



Université
de Toulouse

THÈSE

En vue de l'obtention du DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Université Toulouse III Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier)

Discipline ou spécialité :

Ingénierie et Physique des Plasmas

Présentée et soutenue par :

Mohamed MEZIANE

le : mardi 22 novembre 2011

Titre :

Modélisation 2D et 3D d'un écoulement gazeux instationnaire activé par
décharges couronne dans un réacteur multi-pointes plan dédié à la
décontamination des gaz

Ecole doctorale :

Génie Electrique, Electronique et Télécommunications (GEET)

Unité de recherche :

U.M.R CNRS - 5213

Directeur(s) de Thèse :

Olivier EICHWALD
Jean-Philippe SARRETTE

Professeur d'Université
Chargé de Recherche CNRS

LAPLACE, Toulouse
LAPLACE, Toulouse

Rapporteurs :

Emmanuel ODIC
Ahmed KHACEF

Professeur d'Université
Ingénieur de Recherche

SUPELEC, Paris
GREMI, Orléans

Membre(s) du jury :

Mohammed YOUSFI
Jean-Marc BAUCHIRE

Directeur de Recherche CNRS
Maître de Conférence

LAPLACE, Toulouse
GREMI, Orléans

À ma mère et mon père.

À mon frère et mes sœurs.

À ceux qui ne sont plus là.

Remerciements

Au terme de cette belle expérience qu'est la thèse de doctorat, je tiens tout d'abord à adresser mes plus vifs remerciements à Olivier Eichwald et Jean-Philippe Sarrette, qui ont dirigé ce travail avec beaucoup d'abnégation et de professionnalisme ; je suis particulièrement reconnaissant à la confiance qu'ils m'ont toujours témoignée. J'ai également apprécié leur disponibilité et leurs conseils avisés ; je tiens à leur exprimer ma profonde gratitude de m'avoir fait bénéficier de leur grande expérience scientifique avec des qualités humaines indéniables.

Mes remerciements s'adressent également à Emmanuel Odic et Ahmed Khacef, d'avoir accepté d'être les rapporteurs de mon travail de thèse et d'avoir sacrifié de leurs temps à cet égard. Je remercie également Jean-Marc Bauchire, d'avoir accepté d'examiner ce travail. Je tiens aussi à remercier Mohammed Yousfi pour avoir présidé le jury, je le remercie également pour toutes les discussions que nous avons eu ensemble.

Je voudrai également remercier tous les membres du groupe PRHE, notamment Olivier Ducasse ; je le remercie pour ses remarques pertinentes et ses conseils avisés. Je remercie aussi mes amis et mon entourage dans le laboratoire durant ses trois années : Mustapha Zakari, Amine Erradi, Philippe Coche, Jonathan Claustre, Nabila Berrahou, Cherif Bouzidi, Yu Zhu, Sédiré Mirzaei, Thomas Unfer, Estelle Leysenne, Juslan Lo, Nicolas Kohen, Lucile Hubert et tous les autres () ; ils participent tous à la bonne ambiance générale.

Un grand merci à tous les thésards du LAPLACE, en leur souhaitant une très bonne continuation dans leur travail.

Je remercie enfin tout les gens qui ont participé de près comme de loin à la réalisation de ce travail jusqu'aux petites mains qui veillent sur la propreté du laboratoire et son bon fonctionnement.

Table des matières

Table de notations	1
Liste des figures	7
Liste des tableaux	13
Introduction générale.....	15
Chapitre I. : Caractéristiques des plasmas froids hors équilibre à la pression atmosphérique	21
I. Introduction.....	21
II. Mode de génération des plasmas non thermiques à la pression atmosphérique	22
II.1 Génération d'un plasma par faisceaux d'électrons.....	22
II.2 Plasmas micro-ondes	24
II.3 Plasmas radiofréquence	25
II.4 Décharges électriques à la pression atmosphérique	26
II.4.1 Décharges à Barrière Diélectrique	26
II.4.2 Décharges couronnes positives	28
III. Caractéristiques expérimentales des décharges couronnes positives pointe-plan	30
III.1 Présentation du dispositif expérimental	30
III.2 Le régime « onset streamer »	33
III.3 Le régime « glow »	33
III.4 Le régime « breakdown streamer »	35
III.4.1 Observations expérimentales	35
III.4.2 Explications phénoménologiques	36
III.5 Décharges en régime de tension pulsée et réacteurs multi-pointes.....	38
IV. Phénomènes physico-chimiques induits par les décharges couronnes	40
IV.1 Vent ionique.....	40
IV.2 Phénomènes thermiques	42
IV.2.1 Choc thermique et onde de pression	42
IV.2.2 Réservoir d'énergie vibrationnelle.....	43
IV.3 Phénomènes chimiques.....	44
IV.3.1 Cinétique de la phase de décharge.....	45
IV.3.2 Cinétique de la phase de post-décharge et bilan	46
V. Conclusion	47
Chapitre II. : Modèle pour la simulation des réacteurs corona et logiciel de résolution.....	51
I. Introduction.....	51
II. Description du modèle mathématique	52
II.1 Introduction	52
II.2 Concept de milieu continu et modèle fluide.....	52
II.3 Description eulérienne et lagrangienne	54
II.4 Modèle électro-dynamique du streamer	54
II.5 Modèle d'écoulement d'un gaz neutre réactif.....	57
II.5.1 Types d'écoulements.....	57

II.5.2 Equation de conservation de la masse	58
II.5.3 Equation de conservation de la quantité de mouvement	59
II.5.4 Equation de conservation des espèces chimiques	60
II.5.5 Equation de conservation de l'énergie	62
II.5.6 Modèle de turbulence k- ϵ standard :	65
II.5.7 Modèle de turbulence RNG k- ϵ (ReNormalisation Group):	66
II.5.8 Modèle des tenseurs de Reynolds	67
II.5.9 Coefficients de diffusion massique	68
II.5.10 Relations de fermeture	69
II.6 Phénomènes de couplages	70
III. Etat de l'art de la simulation des réacteurs corona	71
IV. Le logiciel FLUENT : un outil de résolution du modèle.....	74
IV.1 Choix du maillage.....	77
IV.2 Méthodes de discrétisation	78
IV.3 Méthode numérique de FLUENT	81
IV.3.1 Résolution du couplage pression-vitesse dans le cas d'un écoulement incompressible.....	81
IV.3.2 Conditions aux limites et conditions initiales	81
IV.3.3 Convergence	82
V. Conclusion	82
Chapitre III. : Validation du modèle dans une configuration mono-pointe plan.....	87
I. Introduction.....	87
II. Conditions de simulation.....	88
II.1 Conditions expérimentales	88
II.2 Réactivité du mélange et données de base	89
II.3 Géométrie du domaine d'étude et conditions aux limites	92
II.4 Traitement du couplage décharge – dynamique du gaz	94
III. Résultats et analyse	98
III.1 Phase de décharge	98
III.1.1 Validation des termes sources d'injection	98
III.1.2 Remarques sur l'optimisation des durées de simulation	101
III.2 Phase de post-décharge en régime statique.....	102
III.2.1 Etude des effets thermiques	103
III.2.2 Etude de la réactivité du mélange	105
III.3 Phase de post-décharge en présence d'un écoulement.....	110
III.3.1 Ecoulement latéral traversé par une unique décharge.....	110
III.3.2 Effets des injections périodiques et de la direction de l'écoulement	112
III.3.3 Influence du régime d'écoulement.....	117
IV. Conclusion.....	119
Chapitre IV. : Simulation 2D de la production d'ozone et du traitement des oxydes d'azote dans un réacteur multi pointe-plan	123
I. Introduction.....	123
II. Conditions de simulation.....	124
III. Etude de la production d'ozone par décharge couronne multi-pointes.....	126

III.1 Introduction.....	126
III.2 Cas d'un réacteur multi-pointes – plan traversé par un écoulement transversal de 5m.s^{-1}	127
III.2.1 Production d'ozone et variation de la température du gaz.....	127
III.2.2 Formation des oxydes d'azote NO et NO ₂	131
III.2.3 Effet de l'augmentation du nombre des pointes.....	134
III.3 Influence de l'orientation et de la vitesse d'écoulement sur la production d'ozone	136
IV. Etude de la dépollution d'un effluent gazeux initialement pollué par 400ppm de NO	140
IV.1 Introduction.....	140
IV.2 Etude sur un temps de traitement de 1ms	141
IV.3 Etude sur un temps de traitement de 10ms (100 décharges).....	146
V. Conclusion	153
Chapitre V. : Modélisation 3D d'une décharge couronne destinée à la dépollution des gaz	157
I. Introduction.....	157
II. Conditions de simulation :	157
III. Description du maillage du réacteur mono pointe.....	158
IV. Résultats de la modélisation 3D en configuration mono Pointe-Plan:	160
V. Résultats de la dépollution avec une décharge multi Pointes-Plan :.....	165
VI. Conclusion :	170
Conclusion générale	173
Annexe A	177
Références	179

Table de notations

Symboles	Définition	Unités
ρ	Densité de masse du gaz neutre	Kg m^{-3}
I	Courant électrique	A
Z	Distance inter électrodes	mm
A_G	Section de la décharge	m^2
\bar{u}	Vitesse	m s^{-1}
ω_i	Mobilité des ions	$\text{V}^{-1} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$
V	Potentiel	V
E	Champ électrique	V m^{-1}
$\bar{\bar{u}}$	Vitesse moyenne	m s^{-1}
λ	Libre parcours moyen	nm
P	Pression	Pa
d	Diamètre de collision	\AA
T	Température	K
t	Temps	s
\vec{r}	Variable d'espace	m
ϵ_0	Permittivité du vide	$\text{C V}^{-1} \text{m}^{-1}$
ϵ_r	Permittivité relative du milieu	-
q_s	Charge portée par l'espèce « s »	C
n_s	Densité des espèces chargées « s »	m^{-3}

Table de notations

S_s	Terme source de l'espèce « s »	$\text{m}^{-3} \text{s}^{-1}$
ω_s	Mobilité de l'espèce « s »	$\text{V}^{-1} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$
D_s	Coefficient de diffusion de l'espèce « s »	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
n	Densité du gaz	Kg m^{-3}
Ma	Nombre de Mach	-
a	Vitesse du son	m s^{-1}
Re	Nombre de Reynolds	-
L	Longueur caractéristique	m
ν	Viscosité cinématique	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
Re_c	Nombre de Reynolds critique	-
m	Masse	Kg
$\Rightarrow \tau = \tau_{ij}$	Tenseur des contraintes visqueuses	Pa
\vec{S}_{qm}	Terme source de transfert de quantité de mouvement	$\text{kg m}^{-3} \text{s}^{-1}$
$\bar{\vec{S}}_{qm}$	Terme source moyen de transfert de quantité de mouvement	$\text{kg m}^{-3} \text{s}^{-1}$
μ	Viscosité dynamique	$\text{Kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$
u_i, u_j	Composantes du vecteur vitesse	m s^{-1}
ρ_l	Densité de masse de l'espèce neutre « l »	Kg m^{-3}
c_l	Fraction massique de l'espèce « l »	-
S_l	Terme source du aux réactions chimiques	$\text{Kg m}^{-3} \text{s}^{-1}$
S_{l_s}	Terme de création de nouvelles espèces neutres actives	$\text{Kg m}^{-3} \text{s}^{-1}$
J_l	Flux de diffusion massique de l'espèce « l »	$\text{Kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$
D_l	Coefficient de diffusion massique de l'espèce « l » dans le mélange	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
D_l^T	Coefficient de thermo diffusion	$\text{Kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$

Table de notations

h	Enthalpie	J
h_l	Enthalpie de l'espèce « l »	J
$C_{p,l}$	Chaleur spécifique de l'espèce « l »	$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$
T_{ref}	Température de référence	K
K	Conductivité thermique	$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$
S_h	Terme source énergétique	W m^{-3}
$f_i(E/n)$	Fraction de la densité de puissance totale transférée par collisions élastiques	-
$f_{ex}(E/n)$	Fraction de la densité de puissance totale transférée par collision inélastiques	-
$f_v(E/n)$	Fraction d'énergies vibrationnelles	-
τ_v	Durée de la relaxation vibrationnelle	s
ϵ_v	Densité d'énergie des états vibrationnels	C m^{-2}
S_v	Terme source vibrationnel	W m^{-3}
ϕ	Grandeur physique	-
$\langle \phi \rangle$	Valeur moyenne temporelle de ϕ	-
ϕ'	Perturbation	-
μ_t	Viscosité turbulente	$\text{Kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$
δ_{ij}	Symbole de Kronecker	-
χ	Energie cinétique turbulente	$\text{m}^{-2} \text{s}^{-2}$
$C_{1\epsilon}, C_{2\epsilon}$ et C_μ	Constantes empiriques	-
ϵ	Dissipation visqueuse turbulente	-
Pr_χ et Pr_ϵ	Nombres de Prandtl de la diffusion turbulente	-
G_χ	Taux de production de l'énergie cinétique turbulente	-

Table de notations

ψ	Inverse du nombre de Prandtl turbulent	-
R	Taux de déformation	-
μ_{eff}	Viscosité effective	$\text{Kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$
X_l	Fraction molaire de l'espèce « l »	-
X_k	Fraction molaire de l'espèce « k »	-
D_{lk}	Coefficient de diffusion binaire	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
M_l et M_k	Masse molaire des espèces « l » et « k »	Kg mol^{-1}
d_{lk}	Diamètre de collision	\AA
Ω_{lk}	Intégrale réduite de collision	-
k_B	Constante de Boltzmann	J K^{-1}
β	Energie du puit du potentiel d'interaction	J
D_t	Coefficient de diffusion massique	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
n_l	Densité de l'espèce « l »	m^{-3}
ϕ_X	Valeur de ϕ au point X	-
ϕ_{nb}	Valeur de ϕ au point central des cellules adjacentes	-
b_X et b_{nb}	Coefficients de l'équation aux dérivées partielles	-
ε_ϕ	Critère de convergence	-
Δt	Ecart de temps	s
R^φ	Résidu associé à variable " φ "	-
d_{lk}	Diamètre de collision entre 2 espèces « l » et « k »	\AA
Y_{O_2} et Y_{N_2}	Fractions massiques des espèces O_2 et N_2	-
c_p	Capacité calorifique	J K^{-1}

Table de notations

t_d	Durée de la décharge	s
r_d	Rayon de la décharge	m
t_p	Temps après l'onde de choc	s
$R_\alpha(T)$	Taux de réaction d'Arrhenius	$\text{mol m}^{-3} \text{s}^{-1}$
θ	Energie d'activation	J mol^{-1}
κ	Facteur pré-exponentiel de la loi d'Arrhenius	$\text{m}^3 \text{s}^{-1}$ et $\text{m}^6 \text{s}^{-1}$
γ	Exponentiel de la température dans la loi d'Arrhenius	K
$\vec{\nabla}$	Opérateur gradient	m^{-1}
$\nabla \cdot$	Opérateur divergence	m^{-1}
∂	Opérateur de différentielle partielle	-

Liste des figures

Figure I.1: Dispositif plasma de traitement d'effluent gazeux par faisceau d'électrons (Penetrante 1997)	23
Figure I.2 : Schéma d'un dispositif utilisé pour la stérilisation de l'instrumentation médicale par post décharge micro-onde en flux (Ricard 2010).....	25
Figure I.3 : Configuration DBD, les charges transitent par le canal conducteur et se déposent sur le diélectrique (en bleu).....	27
Figure I.4 : Schémas de décharges à barrière diélectrique (en bleu), avec un gap en volume (a, b et c) ou en surface (d).....	28
Figure I.5: Exemple de configurations de décharge couronne, pointe-plan et fil-cylindre. Le matériau en bleu correspond à un diélectrique. Selon les applications et le design des réacteurs, la haute tension (HT) peut être de forme DC, pulsée ou AC (Eichwald 2011).	29
Figure I.6: Schéma de principe et photo du dispositif expérimental.....	31
Figure I.7 : Photographie des électrodes dans l'enceinte du réacteur (a) mono pointe-plan et (b) multi pointe-plan.....	31
Figure I.8: Caractéristique courant-tension des décharges couronnes « pointe-plan » dans l'air à pression atmosphérique (Dubois 2006).	32
Figure I.9: Photographie de la décharge couronne en régime « onset streamer » obtenue avec une caméra ICCD pour une durée d'acquisition de 1s (Dubois 2006).....	33
Figure I.10: Les différentes régions d'une décharge couronne glow positive (Goldman 1985)	34
Figure I.11: Photographie d'une décharge en régime « breakdown streamer » à l'aide de la caméra ICCD pour un temps d'acquisition de 10 μ s (Dubois 2006).	35
Figure I.12: Allure des impulsions de courant en mode « breakdown streamer » et correspondance avec une image d'évolution spatio-temporelle obtenue avec une streak camera (Dubois 2006).	36
Figure I.13: Les étapes du développement d'un primary streamer.	38
Figure I.14: Images ICCD des décharges couronnes sous tension pulsée (temps d'exposition = 10ms, distance inter-électrode = 8mm, $V_{max} = 8kV$, durée du pulse = 40 μ s, fréquence de répétition 100Hz): (a) cas mono-pointe (Dubois 2006), (b) cas multipointes (Abahazem 2009).	39
Figure I.15: Images streak du développement des 18 premières décharges dans un échelon de tension (distance inter-électrode = 7mm, $V_{max} = 7,8 kV$) (Dubois 2006).	40

Figure I.16 : Propagation spatio-temporelle de l'onde de choc entre la pointe et le plan (Ono 2004).....	43
Figure I.17 : Schéma des principales étapes de processus de la dépollution par décharge couronne	47
Figure II.1: Les étapes de résolution FLUENT d'un écoulement instationnaire et incompressible.....	76
Figure II.2 : Maillage structuré Figure II.3 : Maillage non structuré	77
Figure III.1 : Domaine d'étude d'une décharge mono-filamentaire (a) vitesse d'écoulement latérale, (b) vitesse d'écoulement verticale.	92
Figure III.2 : Exemple du profil du radical d'oxygène en m^{-3} (Ducasse 2006)	95
Figure III.3 : Méthode d'injection des termes sources dans les mailles	97
Figure III.4 : Comparaison du profil axial de la température à l'instant $t = t_p = 300 \text{ ns}$ et zoom de la cartographie 2D de la température au voisinage de la pointe.....	98
Figure III.5 : Comparaison des profils axiaux des radicaux N et O et du métastable $\text{O}_2 (a^1\Delta_g)$ à l'instant $t = 150 \text{ ns}$ et zoom de la cartographie 2D du radical O.	99
Figure III.6 : Comparaison des profils axiaux des métastable $\text{N}_2 (A^3\Sigma_u^+)$, $\text{N}_2 (a^1\Sigma_u^-)$ à l'instant $t = 150 \text{ ns}$	99
Figure III.7 : Evolution de la température le long de l'axe de la décharge à l'instant $t = 50 \mu\text{s}$ avec ou sans la prise en compte de la relaxation des états vibrationnels en énergie thermique.....	103
Figure III.8 : Cartographies 2D du champ de température du gaz en K (domaine $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$)	104
Figure III.9 : Cartographies 2D de la densité de masse du gaz (Kg m^{-3}) (domaine $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$)	105
Figure III.10 : Cartographies de la densité de O en m^{-3} (domaine $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$).....	106
Figure III.11 : Cartographies de la densité de O_3 en m^{-3} (domaine $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$).....	107
Figure III.12 : Cartographies de la densité de $\text{O}_2 (a^1\Delta_g)$ en m^{-3} (domaine $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$)	108
Figure III.13 : Cartographies de la densité de N en m^{-3} (domaine $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$).....	109
Figure III.14 : Cartographies de la densité de NO en m^{-3} (domaine $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$).....	109
Figure III.15 : Cartographies de la densité de NO_2 en m^{-3} (domaine $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$).....	109
Figure III.16 : Cartographies de la température en K avec un flux latéral de 5 m.s^{-1} (domaine $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$).....	111
Figure III.17 : Cartographies des densités en m^{-3} à l'instant $0,1 \text{ ms}$ avec un flux latéral de 5 m.s^{-1} : (a) O et (b) O_3	112
Figure III.18 : Cartographies de la température du gaz en K.....	114
Figure III.19 : Cartographies de la concentration O en m^{-3}	114
Figure III.20 : Cartographies de la concentration O_3 en m^{-3}	114

Figure III.21 : Cartographies de la température du gaz en K.....	115
Figure III.22 : Cartographies de la concentration de O en m^{-3}	115
Figure III.23 : Cartographies de la concentration de O_3 en m^{-3}	115
Figure III.24 : Evolution de la concentration maximale d'atomes O sur la pointe entre 0 et 1ms.	116
Figure III.25 : Evolution de la concentration maximale d'ozone sur la pointe entre 0 et 1ms	117
Figure III.26 : Zoom de l'évolution spatiale de la température en fonction du régime d'écoulement à l'instant $t = 0,1$ ms. (a) Laminaire, (b) turbulent k- ϵ standard et (c) turbulent RNG k- ϵ	118
Figure IV.1: Schéma du domaine 2D utilisé pour la simulation d'un réacteur multi pointes-plan.....	124
Figure IV.2: Cartographies 2D de, (a) la température du gaz en K et (b) la concentration en oxygène atomique en m^{-3} , à la fin de la phase de décharge ($t = 150\text{ns}$).....	126
Figure IV.3 : Evolution spatiotemporelle de la température en K (domaine de $1\text{ cm} \times 2\text{ cm}$)	128
Figure IV.4 : Température moyenne intégrée sur tout le domaine ($1\text{ cm} \times 2\text{ cm}$) (cas de deux pointes).....	129
Figure IV.5 : Evolution spatiotemporelle de la densité d'ozone en m^{-3} (domaine de $1\text{ cm} \times 2\text{ cm}$).....	130
Figure IV.6 : Densité moyenne de O_3 intégrée sur tout le domaine ($1\text{ cm} \times 2\text{ cm}$) (cas de deux pointes).....	130
Figure IV.7 : Evolution temporelle de la densité maximale d'ozone en présence de deux pointes.	131
Figure IV.8 : Evolution spatiotemporelle de la densité de NO en m^{-3} (domaine de $1\text{ cm} \times 2\text{ cm}$).....	133
Figure IV.9 : Evolution spatiotemporelle de la densité de NO_2 en m^{-3} (domaine de $1\text{ cm} \times 2\text{ cm}$).....	133
Figure IV.10 : Cartographies de la température du gaz (K) et de la densité d'ozone (m^{-3}) à l'instant $t = 1\text{ ms}$, après dix périodes décharge / post décharge : (a) une pointe, (b) deux pointes, (c) trois pointes et (d) quatre pointes (vitesse latérale = 5 m.s^{-1}).....	134
Figure IV.11 : Evolution de la température moyenne du gaz à l'intérieur du domaine de calcul de la figure IV.1 en fonction du nombre de pointes à $t = 1\text{ ms}$	135
Figure IV.12 : Densité moyenne d'ozone à 1ms en fonction du nombre de pointes.....	136
Figure IV.13 : Schéma 2D de la simulation d'un réacteur multi pointes-plan traversé par un écoulement initial vertical.	136
Figure IV.14 : Cartographie de la concentration d'ozone (en m^{-3}) à 1ms pour un flux initial latéral de (a) 5 m.s^{-1} et (b) de 10 m.s^{-1}	137

Figure IV.15 : Cartographie 2D de la concentration d'ozone (m^{-3}) à 1ms pour un flux initial vertical de (a) 5m.s^{-1} et (b) de 10m.s^{-1}	138
Figure IV.16 : Densité maximale d'ozone en fonction de la vitesse et de l'orientation de l'écoulement	139
Figure IV.17: Densité moyenne d'ozone en fonction de la vitesse et de l'orientation de l'écoulement	139
Figure IV.18 : Cartographies des densités de NO en m^{-3} (domaine de $1\text{ cm} \times 2\text{ cm}$)	142
Figure IV.19 : Cartographies des densités de NO ₂ en m^{-3} (domaine de $1\text{ cm} \times 2\text{ cm}$)	142
Figure IV.20 : Cartographies des densités de O ₃ en m^{-3} (domaine de $1\text{ cm} \times 2\text{ cm}$)	143
Figure IV.21 : Variation de la concentration moyenne de NO en échelle normée, en fonction du temps et pour une seule pointe activée (100% = 400 ppm)	143
Figure IV.22 : Cartographies de la température (K) et des densités de NO, NO ₂ et O ₃ (en m^{-3}) à 1 ms lorsque 4 pointes sont activées (domaine $1\text{ cm} \times 2\text{ cm}$)	144
Figure IV.23: Concentration moyenne de NO en échelle normée à 1ms et en fonction du nombre de pointes (100% = 400 ppm)	145
Figure IV.24: Cartographies de la densité de NO (m^{-3}) pour 3 pointes activées	147
Figure IV.25: Cartographies de la densité de NO (m^{-3}) pour 4 pointes activées	147
Figure IV.26: Evolution de la concentration moyenne de NO en échelle normée à 10 ms et en fonction du nombre de pointes activées.	147
Figure IV.27: Cartographies de la concentration de NO (m^{-3}) lorsque 10 pointes sont activées (domaine $5,5\text{ cm} \times 1\text{ cm}$)	149
Figure IV.28: Cartographie de la concentration de O ₃ (m^{-3}) lorsque 10 pointes sont activées (domaine $5,5\text{ cm} \times 1\text{ cm}$)	149
Figure IV.29: Cartographie de la température du gaz (K) lorsque 10 pointes sont activées..	150
Figure IV.30: Cartographie de la concentration de NO (m^{-3}) lorsque 6 pointes sont activées (domaine $5,5\text{ cm} \times 1\text{ cm}$)	150
Figure IV.31: Evolution temporelle des densités moyennes de NO, NO ₂ et O ₃ en ppm	151
Figure IV.32: Evolution temporelle de la température moyenne du gaz dans et à la sortie du domaine.	152
Figure V.1 : Schéma du domaine 3D de simulation d'une décharge mono pointe-plan et zoom sur la zone d'injection des termes sources (canal en rouge).	158
Figure V.2 : Maillage de la géométrie 3D. (a) toute la géométrie et (b) zoom sur la zone de la pointe (vue de dessus).	160
Figure V.3 : Cartographies 3D de la température du gaz en K (domaine de $1\text{cm} \times 1\text{cm} \times 1\text{cm}$)	162
Figure V.4 : Cartographies 2D de la température du gaz en K obtenues par une simulation 2D dans les mêmes conditions physiques que la simulation 3D (domaine $1\text{cm} \times 1\text{cm}$)	162

Figure V.5 : Zoom sur la distribution de température (K) autour de la pointe à l'instant $t = 1\text{ms}$. (a) sans maillage et (b) avec le maillage.....	163
Figure V.6 : Cartographies 3D de la densité de NO en (m^{-3}) (domaine de $1\text{cm}\times 1\text{cm}\times 1\text{cm}$). 163	163
Figure V.7 : Cartographies des densités de NO en m^{-3} (domaine de $1\text{cm}\times 2\text{cm}$).....	164
Figure V.8 : Diffusion de NO dans le plan horizontal de visualisation ($y = 7\text{mm}$).	164
Figure V.9 : Maillage 3D de la configuration multi-pointes.....	165
Figure V.10 : Cartographie 3D de la température du gaz (K) à $t = 1\text{ ms}$	167
Figure V.11 : Champ de température 2D dans les plans de visualisation (a) $z = 5\text{ mm}$ et (b) $y = 7\text{ mm}$ à l'instant $t = 1\text{ ms}$	167
Figure V.12 : Cartographie 3D de la concentration de NO (m^{-3}) à $t = 1\text{ ms}$	168
Figure V.13: Cartographies 2D de la concentration de NO (m^{-3}) dans les plans de visualisation (a) $z = 5\text{ mm}$ et (b) $y = 7\text{ mm}$ à l'instant $t = 1\text{ ms}$	168
Figure V.14: Comparaison de l'évolution de la densité de NO à l'instant $t = 1\text{ ms}$, (a) simulation 2D et (b) simulation 3D.....	170

Liste des tableaux

Tableau I.1: Energies seuil de dissociation, d'ionisation, de vibration et de rotation des molécules de l'air sec.	46
Tableau II.1: Libres parcours moyens de quelques molécules à la pression atmosphérique et à 300K (Ruste)	53
Tableau II.2: Valeurs par défaut des constantes empiriques utilisées pour le modèle k- ϵ	66
Tableau II.3: Valeurs typiques de coefficients du modèle RNG k- ϵ pour des valeurs élevées du nombre de Reynolds.....	67
Tableau III.1 : Valeurs des paramètres du potentiel de Lennard-Jones utilisées pour calculer les coefficients de diffusion binaire D_{lk}	90
Tableau III.2 : Les conditions aux limites. Y_{O_2} et Y_{N_2} représentent les fractions massiques des espèces O_2 et N_2	93
Tableau III.3 : Valeurs des sommes de résidus normalisés utilisés pour établir le critère de convergence des solutions des différentes équations.	94
Tableau III.4 : Taux d'augmentation des densités O , O_3 et NO entre la 1 ^{ère} et la 10 ^{ème} décharge.	113
Tableau IV.1: Résumé des conditions de simulation	125
Tableau V.1 : Comparaison de la densité minimale de NO (m^{-3}) en présence d'une décharge dans les deux simulations 2D et 3D.	161

Introduction générale

Le développement des activités industrielles et automobiles entraîne une évolution de la consommation d'énergie qui devient au fil des années de plus en plus importante. Ceci mène à une émission croissante de polluants toxiques dans l'atmosphère. Les principaux polluants liés aux activités industrielles sont le dioxyde de soufre (SO_2), les oxydes d'azote (NO_x), les composés organiques volatils (COV), les poussières, etc. Le monoxyde d'azote NO et le dioxyde d'azote NO_2 sont émis lors des phénomènes de combustion et leurs sources principales sont les véhicules et les installations de combustion (centrales thermiques, dispositifs de chauffage...). Le rejet de ces effluents est maintenant réglementé et les normes sont de plus en plus contraignantes pour les industriels et le secteur automobile. Dans le domaine de la pollution automobile, ces règlements se présentent sous la forme des normes pour la composition des carburants, et des normes Euro I à VI sur les teneurs des gaz d'échappement en monoxyde de carbone, en hydrocarbures, en oxydes d'azote et en particules. Ces normes imposent l'amélioration des techniques de traitement déjà existantes ou le développement de nouveaux procédés plus propres si ces dernières ont atteint leurs limites économiques ou technologiques.

Les techniques de dépollution existantes dites « classiques » ont permis de réduire avec succès les émissions nocives. Cependant, une nouvelle technologie basée sur les plasmas non thermiques est utilisée dans de nombreux domaines comme le contrôle de la pollution des gaz, la production d'ozone, le traitement de surface ou encore la santé. Les plasmas froids à la pression atmosphérique existent sous différentes formes. Dans cette thèse, seuls les plasmas générés par des décharges couronnes de type pointe-plan sont modélisés. Ce type de décharges constitue une source très efficace d'espèces actives. Le contrôle de la pollution par décharges couronnes passe par deux étapes successives correspondant à des échelles de temps distinctes : 1) La phase de décharge qui dure quelques centaines de nanosecondes est celle

pendant laquelle une décharge filamentaire (ayant un diamètre de quelques dizaines de micromètres) est générée par des collisions entre les électrons énergétiques et les molécules du gaz, produisant des radicaux actifs (O, N, OH, HO₂, O₃, etc.) dans des proportions similaires à celles des polluants. 2) La phase post-décharge qui dure quelques centaines de millisecondes est celle où les radicaux formés sont transportés par l'écoulement, ils diffusent et réagissent avec les polluants pour les détruire ou les transformer en de nouvelles espèces moins nocives. En fonction de la nature des sous produits formés, des réactions sur catalyseurs solides viennent compléter le traitement. Chaque traitement du gaz dans les réacteurs plasmas froids à la pression atmosphérique demande des paramétrages spécifiques du réacteur. Le but de cette thèse est de modéliser en régime instationnaire et sur des durées très courtes (~ 0,1 ms) les processus hydrodynamiques, énergétiques et cinétiques qui prennent naissance dans les canaux filamenteux des décharges et qui s'étendent progressivement à l'ensemble du volume du réacteur à travers des simulations multidimensionnelles (2D et 3D) très approfondies, puis de comprendre les différents phénomènes physico-chimiques incluant les phénomènes de transport convectifs et diffusifs, ensuite de suivre en détail les évolutions de la transformation des polluants et les processus de production d'ozone dans l'air sec et dans l'air pollué à la pression atmosphérique. L'injection d'énergie et de radicaux par les décharges couronnes filamenteuses est prise en compte périodiquement et localement à l'aide de termes sources estimés à partir d'un modèle de la phase de décharge précédemment développé dans le groupe.

Ce manuscrit se compose de 5 chapitres. Le premier chapitre présente les différents modes de génération des plasmas non thermiques à la pression atmosphérique. Il présente brièvement le réacteur corona de dépollution des gaz qui est la base du choix de nos conditions de simulation et se termine par un rappel des différents phénomènes hydrodynamiques, énergétiques et cinétiques induit par les décharges couronnes.

Le deuxième chapitre est consacré à la présentation du modèle et du logiciel de résolution. Le modèle électrodynamique du streamer développé par ailleurs dans le groupe y est présenté ; il

modélise la phase de décharge et est à l'origine des différents termes sources inclus dans les équations de la mécanique des fluides prises en compte. L'état de l'art de la simulation des réacteurs coronas de la dépollution des gaz est synthétisé dans la deuxième partie de ce chapitre. Un autre modèle est ensuite présenté, basé sur l'utilisation d'un logiciel commercial (FLUENT) de Computational Fluid Dynamics (CFD) capable de modéliser les écoulements instationnaires réactifs pour un gaz traversé périodiquement par des décharges mono filamentaires.

Le troisième chapitre est consacré à la validation du code dans une configuration 2D mono-pointe plan. La validation est effectuée par confrontation des résultats obtenus à la fin de la phase de décharge à l'aide du logiciel FLUENT avec ceux issus du modèle complet de la phase décharge. Les conditions de simulation sont celles du réacteur expérimental mono-pointe plan développé dans le groupe et fonctionnant avec de l'air synthétique dans les conditions de la température ambiante et de la pression atmosphérique. Les termes sources permettant de prendre en compte le passage périodique des décharges sont estimés à partir d'une simulation du développement de la décharge en se basant sur le modèle de décharge. Dans ce chapitre plusieurs paramètres ont été testés comme l'effet de la vitesse d'écoulement, de la nature du flux et du régime d'écoulement.

Le quatrième chapitre est composé de deux parties. La première est consacré à l'étude de la production d'ozone dans un réacteur mono et multi-pointes plan en présence d'un écoulement gazeux, et la deuxième est dédiée à l'étude de la décomposition d'un effluent gazeux dans un mélange d'air pollué par une faible quantité de monoxyde d'azote «NO». L'influence du nombre des pointes sur la décomposition du polluant est analysée.

Enfin, le dernier chapitre présente les premiers résultats obtenus à l'aide d'une modélisation 3D d'un écoulement instationnaire traversé par des décharges couronne en configuration mono et multi pointe plan.

Chapitre I : Caractéristiques des plasmas froids hors équilibre à la pression atmosphérique

I. Introduction	21
II. Mode de génération des plasmas non thermiques à la pression atmosphérique	22
II.1 Génération d'un plasma par faisceaux d'électrons.....	22
II.2 Plasmas micro-ondes	24
II.3 Plasmas radiofréquence	25
II.4 Décharges électriques à la pression atmosphérique	26
II.4.1 Décharges à Barrière Diélectrique	26
II.4.2 Décharges couronnes positives	28
III. Caractéristiques expérimentales des décharges couronnes positives pointe-plan	30
III.1 Présentation du dispositif expérimental	30
III.2 Le régime « onset streamer »	33
III.3 Le régime « glow »	33
III.4 Le régime « breakdown streamer »	35
III.4.1 Observations expérimentales	35
III.4.2 Explications phénoménologiques	36
III.5 Décharges en régime de tension pulsée et réacteurs multi-pointes.....	38
IV. Phénomènes physico-chimiques induits par les décharges couronnes	40
IV.1 Vent ionique.....	40
IV.2 Phénomènes thermiques	42
IV.2.1 Choc thermique et onde de pression	42
IV.2.2 Réservoir d'énergie vibrationnelle.....	43
IV.3 Phénomènes chimiques.....	44
IV.3.1 Cinétique de la phase de décharge	45
IV.3.2 Cinétique de la phase de post-décharge et bilan	46
V. Conclusion	47

Chapitre I. : Caractéristiques des plasmas froids hors équilibre à la pression atmosphérique

I. Introduction

Les plasmas au sens large du terme regroupent aussi bien la famille des plasmas chauds que des plasmas froids. Les plasmas chauds sont ceux rencontrés au cœur des étoiles ou générés par fusion de deutérium et de tritium soit par confinement magnétique dans les tokamaks soit par concentration de faisceaux laser. Les plasmas chauds sont à des températures de plusieurs millions de degrés et sont des plasmas essentiellement constitués d'électrons et de noyaux atomiques. Par opposition, les plasmas dits froids ont des températures de plusieurs dizaines de milliers de Kelvin et sont essentiellement composés d'électrons et d'ions (une fois ou deux fois chargés) et de particules neutres. On distingue dans cette seconde famille, les plasmas froids à l'équilibre (sous entendu thermodynamique) et les plasmas froids hors équilibre (HE). Dans un plasma à l'équilibre, les espèces qui composent le plasma ont toutes des températures très voisines (de l'ordre de 10000K) alors que dans un plasma HE les électrons ont une énergie très supérieure à celle des espèces lourdes (ions et neutres). Alors que les plasmas froids à l'équilibre sont le plus souvent générés à des pressions proches ou supérieures à la pression atmosphérique, les plasmas froids HE peuvent être générés sur une gamme de pression allant de quelques milli-torr (760 Torr = 10^5 Pa) jusqu'à la pression atmosphérique. Dans la plupart des cas, les plasmas HE sont créés par un processus de décharge électrique entre deux électrodes. On définit la décharge électrique, comme l'ensemble des phénomènes physico-chimiques qui permettent de transférer l'énergie électrique (ou électromagnétique) de la source d'alimentation vers le gaz pour le rendre conducteur. A basse pression, les plasmas froids HE sont diffus et remplissent généralement tout l'espace inter-électrode. A la pression

atmosphérique, les décharges électriques et les plasmas froids HE résultants sont filiformes et peuvent présenter une forme arborescente.

Ce premier chapitre est dédié à la description des principaux modes de génération des plasmas froids HE à la pression atmosphérique et focalise plus particulièrement son contenu sur la génération des décharges couronnes que nous allons modéliser dans le chapitre II. Il rappelle en particulier l'ensemble des phénomènes électriques, hydrodynamiques et chimiques qui sont induits dans un gaz porteur de décharges de type couronne.

II. Mode de génération des plasmas non thermiques à la pression atmosphérique

De nombreuses techniques ont été étudiées au sein des laboratoires pour générer des plasmas non thermiques à la pression atmosphérique dans le but de détruire les polluants présents dans des effluents gazeux ou pour produire de l'ozone. Certaines ont été implémentées sur site pour des applications industrielles. Ces techniques diffèrent par le mode d'alimentation électrique utilisé, la géométrie des électrodes et leurs efficacités de traitement en fonction des polluants visés. Les sources de plasmas non thermiques les plus connues sont les suivantes :

- Irradiation par faisceaux d'électrons ;
- Rayonnement micro-onde (Iza 2005), (Kanazawa 2008), (Kim 2005), (Noel 2009) ;
- Plasmas radiofréquence (Wang 1999), (Tsai 2001) ;
- Décharges électriques à barrière diélectriques (DBD) et décharges couronnes (Dorai 2001), (Eichwald 2008), (Khacef 2006), (Motret 2000), (Odic 2003) ;

Dans les paragraphes suivants, nous allons rappeler les principales caractéristiques de ces réacteurs plasmagènes.

II.1 Génération d'un plasma par faisceaux d'électrons

Dans cette technique, un faisceau d'électrons est généré dans une chambre sous très basse pression ($< 10^{-4}$ mbar) puis injecté dans le gaz à traiter. Les électrons primaires, qui sont généralement émis par une cathode thermo-ionique, sont accélérés par un champ électrique intense de plusieurs centaines de kV.cm^{-1} (voir figure I.1). Ces électrons primaires, en entrant

dans le gaz, effectuent des collisions inélastiques avec les molécules majoritaires du gaz et leur cèdent de l'énergie, principalement à travers des processus d'ionisation, de dissociation et d'excitation. Néanmoins, les électrons gardent une énergie conséquente après collision et peuvent ioniser successivement un grand nombre de molécules en pénétrant plus en profondeur dans le gaz. Le processus s'arrête quand l'énergie des électrons devient inférieure au potentiel d'ionisation des molécules du gaz. Dans ces conditions, le faisceau d'électrons énergétiques a la capacité de générer à la pression atmosphérique un grand volume de plasma réactif plutôt homogène. Du fait de l'énergie élevée des électrons, les pertes d'énergie par échauffement (collisions élastiques) et par peuplement des niveaux rotationnels et vibrationnels sont limitées. Ainsi, la production d'espèces chimiquement actives (essentiellement des radicaux atomiques) est favorisée notamment à travers les différents processus de dissociation. Ce sont ces radicaux qui vont principalement réagir avec les polluants.

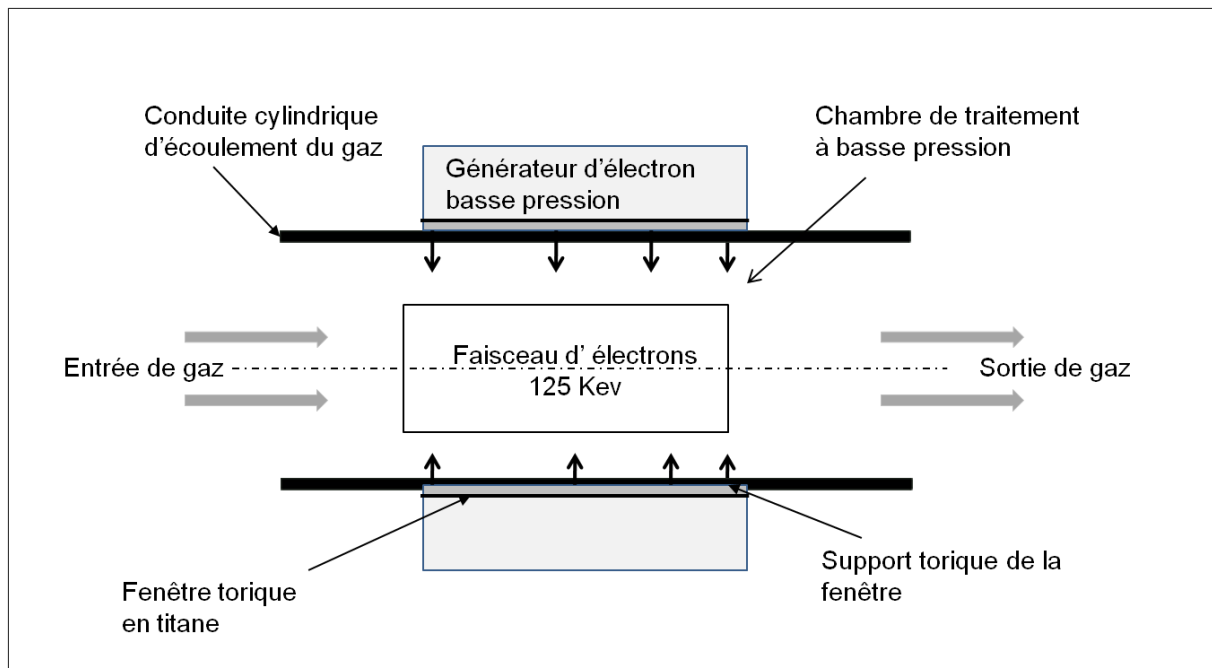


Figure I.1: Dispositif plasma de traitement d'effluent gazeux par faisceau d'électrons (Penetrante 1997)

Les procédés à faisceau d'électrons ont été particulièrement étudiés pour le traitement des effluents gazeux pollués par des oxydes d'azote (NO_x) et/ou de soufre (SO_x) émis par les gaz

d'échappements issus des industries de traitement des déchets domestiques ou des centrales électriques à charbon. Une installation pilote a été développée dans les années 70 au Japon par EBARA (Kawamura 1980) et a ensuite été adaptée à la destruction des COV (Composés Organiques Volatils) par Penetrante (Penetrante 1997) dans les années 80. Cependant, le rendement énergétique de ces pilotes industriels n'a pas fait l'unanimité en raison de divergences dans les méthodes de mesure de l'énergie injectée. A titre d'exemple, Penetrante soutient une plus grande efficacité des faisceaux d'électrons (Penetrante 1995) tandis que Mizuno accorde deux fois plus d'efficacité à une décharge couronne pulsée (Mizuno 1999).

II.2 Plasmas micro-ondes

Dans ce type de plasma, le gaz est ionisé par injection d'une énergie micro-onde (rayonnement électromagnétique) de fréquence variable entre 300 MHz et 10 GHz. Ces plasmas ne sont pas générés à l'aide d'électrodes, comme dans le cas des décharges électriques, mais avec des systèmes à cavité résonante, à guide d'onde ou à effet de surface, alimentés par un générateur de type magnétron ou surfatron.

Les plasmas micro-onde sont caractérisés par une bonne uniformité en volume ou en surface et sont principalement utilisés à basse pression dans les procédés de traitement de surface, de dépôt de couches minces et de gravure (Lin 1988) (Füner 1999) ou, plus récemment, pour la stérilisation de l'instrumentation médicale (Villeger 2005) (Ricard 2005). Ces plasmas sont également utilisés à la pression atmosphérique dans le domaine de l'analyse spectroscopique (Green 2001) et dans le traitement de surfaces métalliques (Tendero 2005) et des matériaux (Cardoso 2007). La figure I.2 montre un dispositif expérimental qui génère les plasmas micro-onde pour la stérilisation de l'instrumentation médicale.

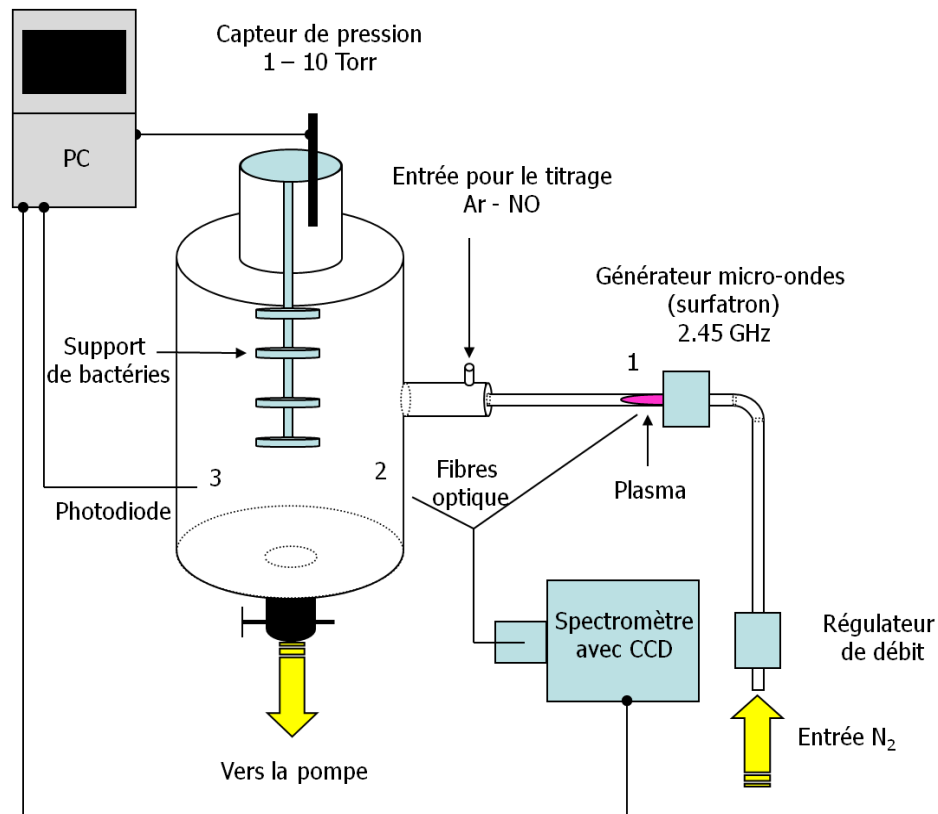


Figure I.2 : Schéma d'un dispositif utilisé pour la stérilisation de l'instrumentation médicale par post décharge micro-onde en flux (Ricard 2010).

II.3 Plasmas radiofréquence

Les ensembles dits radiofréquence fonctionnent avec une alimentation électrique sinusoïdale dont la fréquence est de 13,56 MHz ou une de ses harmoniques (27,12 et 40,68 MHz). Ces systèmes comportent, outre le générateur, un appareil d'adaptation d'impédance et le réacteur. Les générateurs utilisés sont de type amplificateurs, tandis que l'horloge est pilotée par quartz (grande précision et stabilité de la fréquence). La géométrie du réacteur dépend quant à elle du procédé de traitement envisagé. Le couplage entre le réacteur et l'alimentation électrique peut être de type capacitif (le gaz à ioniser est situé entre deux électrodes planes ou cylindriques) ou inductif (le réacteur est placé dans l'axe d'un solénoïde). L'adaptation en impédance permet, de son côté, d'optimiser le transfert d'énergie au milieu ionisé en égalisant les impédances de sortie du générateur et d'entrée du réacteur (qui dépend de la pression, du type de gaz excité ou du type de couplage utilisé).

D'autres méthodes sont plus efficaces et plus adaptées au cas du contrôle de la pollution. Ces méthodes sont plus prometteuses et consistent à créer des électrons énergétiques directement dans le gaz pollué grâce à des décharges électriques de type couronne et/ou à barrière diélectrique. Ces décharges vont être évoquées dans le paragraphe suivant.

II.4 Décharges électriques à la pression atmosphérique

Les plasmas froids non thermiques à la pression atmosphérique sont généralement créés entre deux électrodes par l'application d'une différence de potentiel (continue, alternative ou pulsée) qui génère ensuite des paires électrons-ions et une décharge électrique. Les électrons énergétiques sont créés lors de leur accélération par le champ électrique au sein même du milieu gazeux contrairement aux procédés à faisceaux d'électrons, où les électrons énergétiques sont injectés dans le milieu à partir d'une source externe. Lorsque l'énergie gagnée par les électrons est suffisante des collisions inélastiques ont lieu, ce qui permet la formation d'un plasma. A la pression atmosphérique, la décharge électrique possède généralement une structure filamentaire. Le plasma est donc spatialement inhomogène et se compose de décharges filamenteuses lumineuses très fines de quelques dizaines de micromètres de diamètre. Ces décharges traversent le gaz en quelques dizaines de nanosecondes.

Selon la configuration des électrodes, les décharges électriques à la pression atmosphérique peuvent être de type couronne (lorsque les électrodes sont dissymétriques) et/ou DBD (lorsque une ou les deux électrodes sont recouvertes d'un diélectrique).

II.4.1 Décharges à Barrière Diélectrique

Ces décharges ont été utilisées dès 1857 par Siemens pour la formation d'ozone. Elles sont encore actuellement à la base de la production industrielle d'ozone, molécule utilisée pour le traitement des eaux de consommation et des eaux usées.

Les décharges à barrières diélectriques (DBD), également appelées décharges silencieuses (ce nom a été proposé en 1860 par Andrews et Tait (An 1860)) permettent de générer un plasma hors-équilibre thermodynamique à la pression atmosphérique qui se présente le plus souvent sous la forme d'un rideau de filaments lumineux. Ces filaments très fins (d'un diamètre d'environ 100 μ m) traversent l'espace gazeux sur des temps très courts (quelques 10 ns). On

peut noter qu'à la pression atmosphérique et pour des électrodes coplanaires, les distances inter-électrode sont très faibles et ne dépassent pas quelques millimètres. La nature filamentaire et transitoire de la décharge fut révélée en 1932 par Buss dans une DBD coplanaire (Buss 1932). Le principe des DBD consiste à utiliser une couche diélectrique couvrant une ou deux électrodes métalliques. Le diélectrique permet d'éviter le passage à un régime d'arc et assure un fonctionnement transitoire de la décharge (Figure I.3). En effet, l'accumulation des particules chargées sur la surface du diélectrique, au moment de l'arrivée des filaments de décharge sur le diélectrique, génère un champ électrique qui s'oppose au champ externe généré par la tension appliquée entre les électrodes. Au fur et à mesure que les charges électriques se déposent sur le diélectrique, le champ électrique dans le gaz diminue, ce qui induit l'extinction de la décharge avant que les processus de thermalisation du gaz dans les canaux de décharge ne puissent avoir lieu. On peut noter que pour évacuer les charges accumulées sur les diélectriques et permettre le développement de nouvelles décharges, il est nécessaire d'utiliser des tensions alternatives ou pulsées.

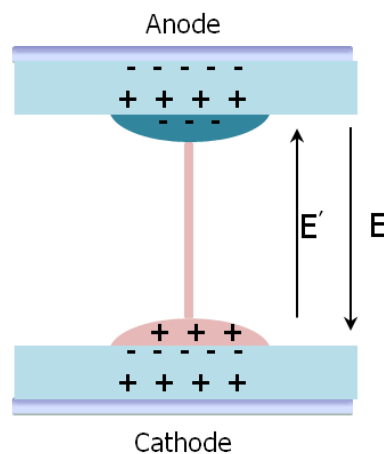


Figure I.3 : Configuration DBD, les charges transitent par le canal conducteur et se déposent sur le diélectrique (en bleu).

Dans le cas des configurations d'électrodes classiques (voir la figure I.4 ci-dessous), la décharge se développe principalement dans l'espace inter-électrode puis s'étale sur la cathode. Mais on peut aussi positionner deux électrodes de part et d'autre de la même plaque diélectrique (Figure I.4d) pour que le plasma se propage directement sur la surface. Ce type de géométrie peut être notamment utilisé pour les actionneurs plasmas (Moreau 2007).

Dans le cas du traitement de la pollution d'un gaz en volume, l'inconvénient des décharges DBD plan-plan réside dans leur faible distance inter-électrode qui est limitée à quelques millimètres à la pression atmosphérique, ce qui limite le volume du gaz à traiter.

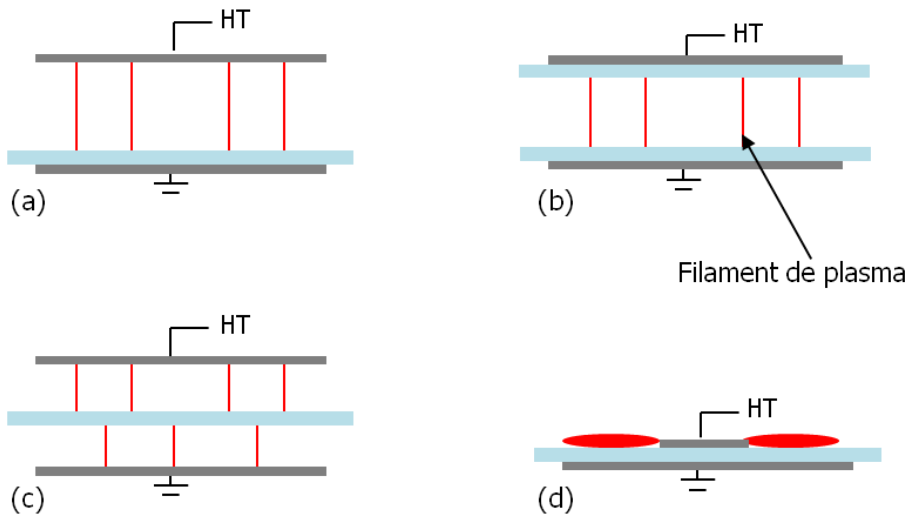


Figure I.4 : Schémas de décharges à barrière diélectrique (en bleu), avec un gap en volume (a, b et c) ou en surface (d).

II.4.2 Décharges couronnes positives

La décharge couronne positive est une décharge hors-équilibre transportant une faible densité de courant. Sous certaines conditions, le plasma a la forme d'une couronne lumineuse autour de l'électrode active d'où le nom donné à ces décharges. Les décharges couronne positives sont générées entre deux électrodes fortement dissymétriques dont l'une, portée à la haute tension, possède un faible rayon de courbure afin d'obtenir un champ électrique important. Les processus d'ionisation sont alors initiés dans la région où le champ électrique est le plus intense. Cette région se situe au voisinage de l'électrode à faible rayon de courbure où naissent et se développent les avalanches électroniques. Sous certaines conditions, ces avalanches se transforment en streamers positifs qui se propagent par photo-ionisation de l'anode vers la cathode. On peut souligner que pour les décharges positives générées entre des électrodes métalliques, la nature du matériau des électrodes influence relativement peu le processus de décharge. Il en est autrement lorsque l'une des électrodes est recouverte d'un

diélectrique à cause des phénomènes d'émission secondaire et d'accumulation de charge. La présence de relief particulier à l'anode peut générer des points de champ fort et donc privilégier le départ d'avalanches et la formation locale de streamers.

La figure I.5 représente les configurations d'électrodes les plus courantes utilisées pour générer des décharges couronnes. Elles se composent d'une anode (mono-pointe, multi-pointe, fil et cylindre) et d'une cathode (plane ou cylindrique). L'avantage de ces décharges est qu'elles permettent le traitement des gaz pollués au sein même de la conduite d'échappement. Les réacteurs peuvent fonctionner avec une large gamme de sources d'alimentation électrique (DC, AC, pulsée) et la distance inter-électrode est grande (de l'ordre du cm) par rapport aux décharges DBD plan-plan ce qui permet de traiter un volume plus important de gaz.

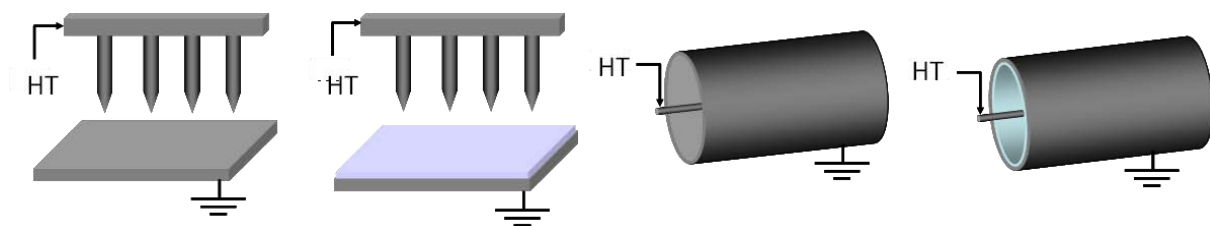


Figure I.5: Exemple de configurations de décharge couronne, pointe-plan et fil-cylindre. Le matériau en bleu correspond à un diélectrique. Selon les applications et le design des réacteurs, la haute tension (HT) peut être de forme DC, pulsée ou AC (Eichwald 2011).

La difficulté principale rencontrée avec ce type de décharge est la transition à l'arc électrique (Hassouni 2004). Cette transition est accompagnée par une forte augmentation du courant circulant dans la décharge et une hausse de la température du gaz. Le plasma généré est par conséquent plus proche de l'équilibre thermodynamique et la puissance injectée dans le gaz est majoritairement dissipée par effet Joule. Dans les applications utilisant des décharges couronnes, on cherche à éviter le passage à l'arc pour ne pas détériorer les électrodes et pour optimiser les processus de formation d'espèces actives en fonction de l'énergie injectée. On peut par exemple utiliser des impulsions courtes de tension et/ou recouvrir la cathode d'un diélectrique.

Il existe d'autres types de décharges qui ont été développés pour différentes applications mais elles consomment plus d'énergie que les décharges précédentes. On peut citer par exemple les décharges glissantes (glidarc) (Dupouey 1998) (Czernichowski 1992) (Yardimci 2000), ou un arc électrique est entraîné par le flux du gaz entre deux électrodes divergentes.

Dans la suite de ce travail, nous allons nous intéresser plus particulièrement aux décharges couronnes filamenteuses générées entre une pointe et un plan.

III. Caractéristiques expérimentales des décharges couronnes positives pointe-plan

III.1 Présentation du dispositif expérimental

Les décharges couronne sont dites positives si la haute tension est appliquée sur l'électrode de plus faible rayon de courbure (la pointe dans notre cas). Le dispositif expérimental développé au laboratoire et permettant d'étudier ces décharges (voir les figures I.6 et I.7) est composé d'une enceinte en acier inoxydable renfermant un système d'électrodes de type mono pointe-plan (figure I.7a) et multi pointe-plan (figure I.7b). Les pointes sont en tungstène et le plan en cuivre. La distance inter-électrode est réglable de l'extérieur à l'aide d'une colonne verticale. L'enceinte supporte le vide secondaire et un dispositif de contrôle gère la composition et la pression du gaz à l'aide de débitmètres et de jauges de pression. L'ensemble assure que le mélange obtenu à la pression atmosphérique contient peu d'impuretés. Enfin, la tension appliquée sur la pointe peut être soit continue soit impulsionnelle avec une valeur maximale de 15kV. Le réacteur corona et la validation des protocoles expérimentaux ont été réalisés au cours des thèses de Dubois (Dubois 2006) et Abahazem (Abahazem 2009). L'ensemble du dispositif expérimental a été dimensionné de manière à pouvoir être entièrement simulé à l'aide des outils numériques développés dans le groupe.

La caractérisation des décharges s'effectue grâce à l'intégration de différents outils de diagnostic optique et électrique. La mesure de la tension inter-électrode instantanée est faite au moyen d'une sonde de haute tension et celle du courant de décharge (instantané et moyen) par le biais d'une résistance de 50Ω placée en série entre la cathode et la masse. Une caméra

ICCD est utilisée pour déterminer la morphologie des décharges et une caméra à balayage rapide (streak camera) est utilisée pour étudier l'évolution spatio-temporelle des décharges.

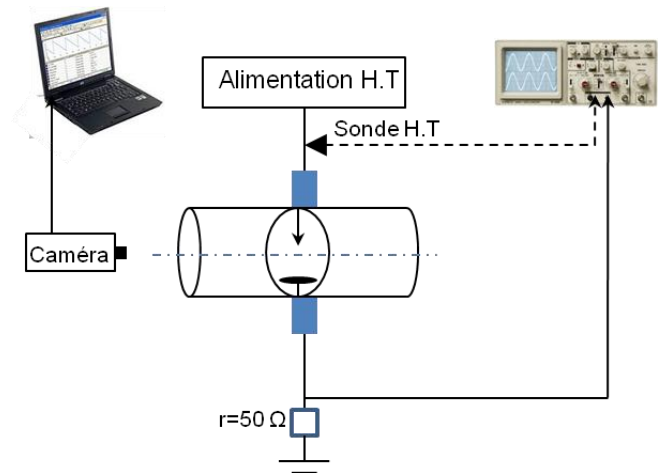
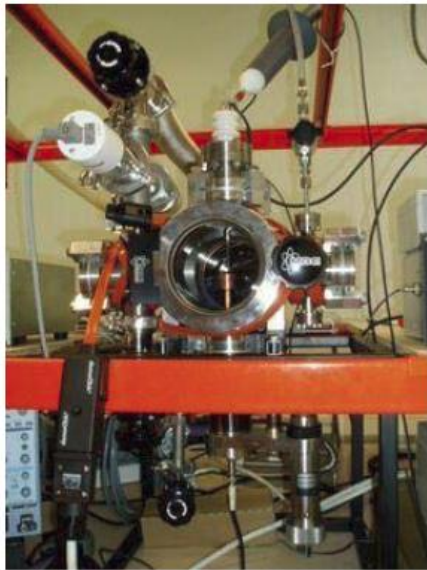


Figure I.6: Schéma de principe et photo du dispositif expérimental.

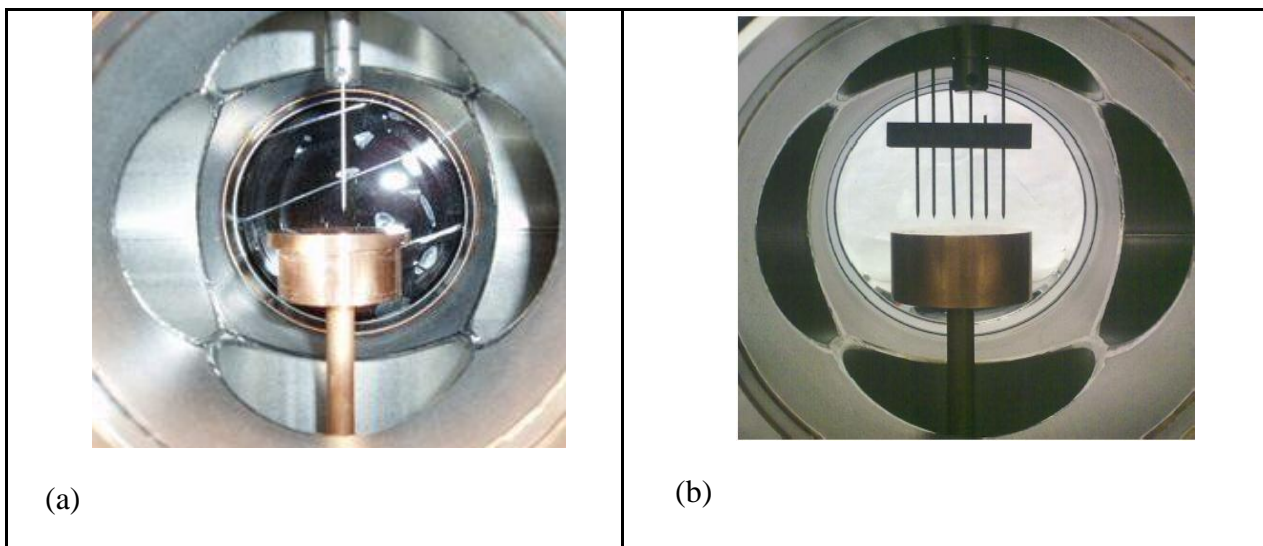


Figure I.7 : Photographie des électrodes dans l'enceinte du réacteur (a) mono pointe-plan et (b) multi pointe-plan

Pour rappeler et caractériser les différents régimes de décharges couronnes positives, nous allons tout d'abord suivre leur évolution en appliquant une tension continue DC dans une configuration mono-pointe plan.

La figure I.8 montre la courbe de variation courant obtenue lorsque l'on augmente progressivement la tension appliquée sur la pointe. Les mesures ont été effectuées dans de l'air synthétique (80% d'azote et 20% d'oxygène) à pression atmosphérique et température ambiante. Le rayon de courbure de la pointe est de 20 μ m et la distance inter électrode est de 7 mm.

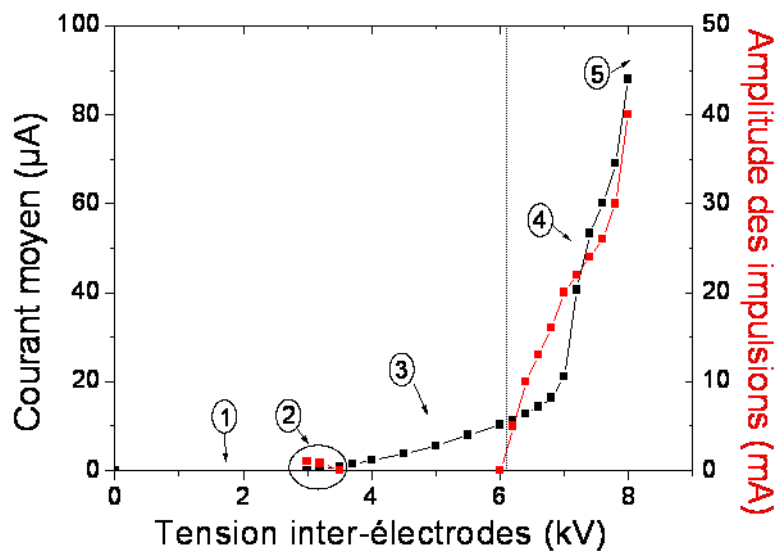


Figure I.8: Caractéristique courant-tension des décharges couronnes « pointe-plan » dans l'air à pression atmosphérique (Dubois 2006).

La figure I.8 montre qu'en dessous d'une tension seuil (zone 1), le courant est trop faible pour être détecté, et au dessus d'une tension seuil de claquage (zone 5), on observe un phénomène de disruption avec l'augmentation brusque du courant et le passage à un régime de décharge spark (étincelle). Entre ces deux zones limites, la caractéristique courant-tension est divisée en trois zones distinctes correspondant à trois régimes de décharges couronnes :

- Régime « onset streamer »
- Régime « glow »
- Régime « breakdown streamer »

Ces différents régimes vont être détaillés dans le paragraphe suivant où nous nous focaliserons plus particulièrement sur le régime de breakdown streamer utilisé pour la dépollution et la production d’ozone.

III.2 Le régime « onset streamer »

Ce régime de décharge couronne correspond à la zone 2 de la figure I.8, c’est la zone d’auto-stabilisation de la décharge. Il est caractérisé par un faible courant moyen dû à de faibles impulsions de courant qui apparaissent de manière instable avec une fréquence de répétition de quelques milliers de Hertz. La courbe rouge de la figure I.8 donne l’amplitude de ces impulsions qui sont de l’ordre de quelques mA. Ces impulsions proviennent du développement et de la propagation de décharges filamenteuses qui restent localisées autour de la pointe. La figure I.9 présente une photographie de la décharge couronne en régime « onset streamer ». Le spot lumineux autour de la pointe correspond à l’intégration sur 1 seconde des petites décharges filamenteuses.

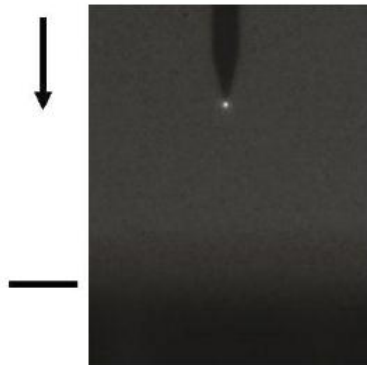


Figure I.9: Photographie de la décharge couronne en régime « onset streamer » obtenue avec une caméra ICCD pour une durée d’acquisition de 1s (Dubois 2006).

III.3 Le régime « glow »

Ce régime correspond à la zone 3 de la figure I.8. Les impulsions de courant disparaissent et la décharge est visible à l’œil nu. Pour ce type de décharge, l’espace inter électrode peut être divisé en trois régions (voir la figure I.10). La première correspond à une zone active

d'ionisation et d'excitation, située au voisinage de la pointe là où le champ électrique géométrique est le plus intense. Cette zone active est très petite et se confond quasiment avec la pointe mais reste toutefois visible à l'œil nu. Puisque la luminosité dans ce régime est très importante, l'allure de la décharge est exactement la même que celle représentée dans la figure I.9 mais obtenue pour un temps d'intégration de $1\mu\text{s}$. L'ionisation du gaz s'effectue exclusivement dans cette région et des avalanches électroniques de type Townsend s'y développent. La seconde région correspond à une zone de dérive ionique où le champ électrique géométrique est trop faible pour permettre l'ionisation du milieu. Cette zone est passive du point de vue « électrique » (car elle ne permet pas la formation d'avalanches électriques) mais elle est le siège d'une activité physico-chimique complexe. En effet, la dérive des ions positifs de l'anode vers la cathode peut mettre en mouvement les molécules de gaz par échange de quantité de mouvement ion-neutre. Enfin, la dernière région est une zone de transition comprise entre les deux zones précédentes. Elle correspond à la valeur critique du champ électrique pour laquelle la création des électrons par ionisation est compensée par les phénomènes de pertes d'électrons par attachement et recombinaison.

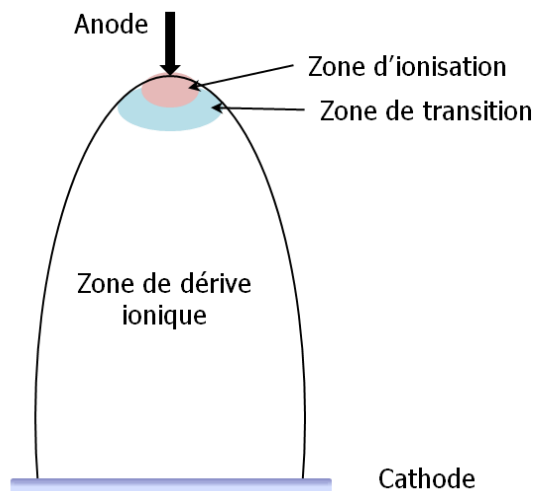


Figure I.10: Les différentes régions d'une décharge couronne glow positive (Goldman 1985)

III.4 Le régime « breakdown streamer »

III.4.1 Observations expérimentales

Ce régime apparaît dans la zone 4 de la figure I.8. Durant le régime « breakdown streamer » le courant moyen augmente rapidement avec la tension inter-électrode à cause de l'appar de nouvelles impulsions de courant apparaissent et se superposent au régime « glow ». De plus, l'amplitude de ces impulsions est beaucoup plus importante (plusieurs dizaines de mA) que celle observée dans le régime « onset streamer » et augmente rapidement avec la tension inter-électrode. La fréquence de répétition de ces décharges est à peu près stable et de l'ordre de 10kHz, tandis que leur durée de vie est de l'ordre d'une centaine de nanosecondes.

La figure I.11 est une photographie de la décharge couronne lors d'une impulsion de courant pour une tension DC de 7,2 kV. Chaque impulsion de courant représente la propagation d'un streamer de la pointe vers le plan. Sous tension continue, la morphologie de la décharge est celle d'un mono filament s'étirant entre la pointe et le plan.

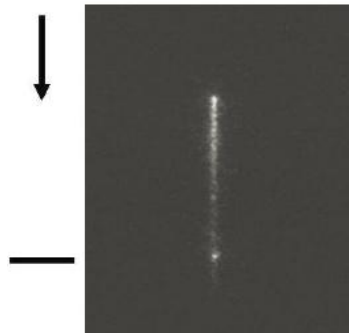


Figure I.11: Photographie d'une décharge en régime « breakdown streamer » à l'aide de la caméra ICCD pour un temps d'acquisition de 10 μ s (Dubois 2006).

La figure I.12 montre l'allure des impulsions de courant à 7,2kV et la correspondance avec une image d'évolution spatio-temporelle de la décharge obtenue avec une streak camera (Dubois 2006). On distingue clairement deux phénomènes de propagation. Le premier correspond à la propagation du primary streamer qui laisse la première trace lumineuse sur l'image streak. La propagation du primary streamer s'accompagne d'une augmentation puis d'un pic de courant correspondant à l'arrivée du primary streamer sur la cathode plane (zones 1 et 2 de la courbe de courant sur la figure I.12). Le second phénomène, qui apparaît plus

diffus sur l'image streak, correspond à la propagation du secondary streamer qui en partant de la pointe, atteint le premier tiers de l'espace inter-électrode. Il s'accompagne d'une légère re-augmentation du courant visible juste après le pic de courant (voir la zone 3 de la courbe de courant).

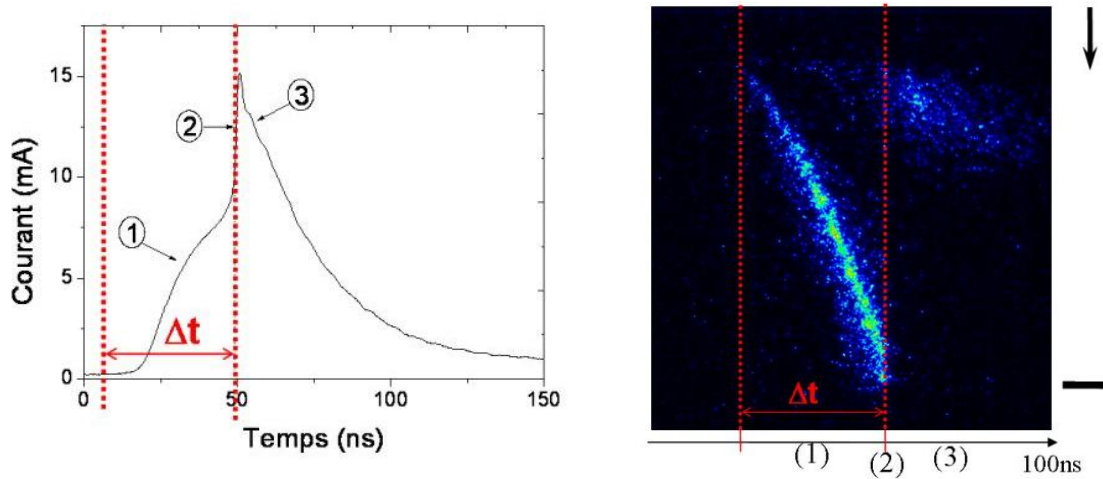


Figure I.12: Allure des impulsions de courant en mode « breakdown streamer » et correspondance avec une image d'évolution spatio-temporelle obtenue avec une streak camera (Dubois 2006).

Le mono-filament de la figure I.11 est donc une image intégrée de ces deux phénomènes de propagation. La zone plus lumineuse du filament, qui s'étend jusqu'à environ 1/3 de la distance inter-électrode en partant de la pointe, correspond en fait à la lumière émise par le secondary streamer.

III.4.2 Explications phénoménologiques

La théorie sur les primary streamers a été développée suite aux travaux de Raether (Raether 1964), Loeb (Loeb 1965) et Graggs (Graggs 1954). A pression atmosphérique, les primary streamers se propagent en quelques dizaines de nanosecondes avec des vitesses voisines à 10^5 m.s⁻¹, ce qui est environ 10 fois supérieur à la vitesse des électrons dans une avalanche électronique. De plus, un streamer positif se propage dans le sens inverse du déplacement naturel des électrons (qui est celui de la cathode vers l'anode). La naissance et le développement d'un primary streamer s'expliquent par une phase d'avalanches électroniques puis de propagation de charge d'espace. Le développement de la décharge commence par une

série d'avalanches électroniques au voisinage de la pointe. La condition d'apparition des avalanches est la présence d'électrons germes dans le gaz et l'application d'une tension suffisamment élevée entre les électrodes. Dans un gaz neutre, les électrons germes sont générés principalement à cause du rayonnement cosmique avec un taux de 7 à 20 électrons par cm^3 et par seconde à la pression atmosphérique (Schonland 1953). En absence de champ électrique, les électrons créés sont consommés par attachement ou recombinaison dans le gaz. Les densités d'électrons restent donc très faibles du fait du nombre important de collisions à la pression atmosphérique. Le gaz est donc isolant et la densité d'électrons germes dans l'air atmosphérique est de l'ordre de 10^3 - 10^4 cm^{-3} (Pancheshnyi 2005). Le champ de claquage dans l'air est typiquement de l'ordre de 30 kV.cm^{-1} . Une telle valeur de champ permet à un électron germe de gagner en moyenne une énergie de plusieurs eV entre chaque collision. Il peut alors ioniser les molécules présentes dans le gaz. Si l'on considère une décharge dans l'air sec, un électron doit acquérir une énergie de 15,58 eV pour ioniser l'azote moléculaire N_2 et 12,07 eV pour ioniser l'oxygène moléculaire O_2 . A partir d'une certaine tension seuil appliquée sur la pointe, les électrons germes gagnent une énergie cinétique supérieure au seuil d'ionisation des espèces majoritaires du gaz entre deux collisions. Ils ionisent donc les molécules du gaz et produisent ainsi de nouveaux électrons (figure I.13a). C'est la formation de la première avalanche. Les électrons ainsi créés sont à nouveau fortement accélérés par le champ électrique et sont absorbés par la pointe anodique. Ils laissent derrière eux des ions positifs moins mobiles du fait de leur inertie (figure I.13b). Une charge d'espace positive prend naissance au voisinage de la pointe qui modifie la répartition du champ géométrique. Le champ devient maximum non plus sur la pointe mais juste devant la charge d'espace ionique (voir figure I.13b). Des nouvelles avalanches électroniques apparaissent qui neutralisent l'ancienne charge d'espace grâce à l'apport de nouveaux électrons qui dérivent vers la pointe. Cependant, ces électrons laissent derrière eux une nouvelle charge d'espace ionique qui s'est déplacée un peu plus vers la cathode (figure I.13c). Ce phénomène se renouvelle continûment et donne naissance à la propagation d'un canal ionisé filamentaire précédé par une onde de charge d'espace ionique appelé couramment la tête du streamer (figure I.13d). Le phénomène de propagation n'est possible que s'il existe suffisamment d'électrons germes au devant de la tête du streamer. Il est communément admis (bien que ce phénomène ne soit pas en mesure de

tout expliquer) que l'apport de nouveaux électrons germes dans la tête du streamer est dû aux processus de photo-ionisation.

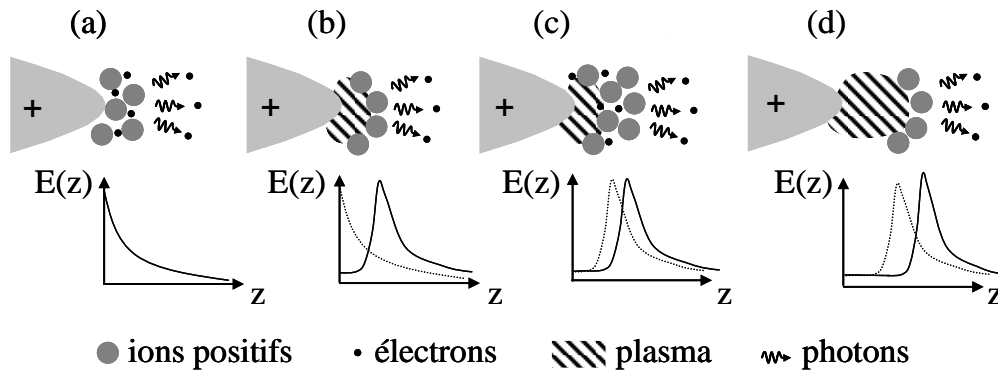


Figure I.13: Les étapes du développement d'un primary streamer.

La génération du secondary streamer est plus complexe à expliquer. Une description détaillée est donnée dans les travaux de Sigmond (Sigmond 1984), Marode (Marode 1979) et Eichwald (Eichwald 2008). Le développement du secondary streamer est dû à une extension d'une zone de champ électrique qui s'étend de la pointe vers le plan dès que le primary streamer se rapproche de la cathode ce qui favorise une multiplication des électrons dans cette zone. Cette extension du champ électrique permet d'assurer la continuité des courants de conduction entre l'anode et la cathode. Le phénomène stabilise le courant de décharge lors de l'absorption de la charge transportée par la tête du streamer à son arrivée sur la cathode. Bien que la valeur du champ dans le secondary streamer soit inférieure au seuil d'ionisation et favorise les processus d'attachement, la zone reste active pour la formation d'espèces excitées et de radicaux par processus d'attachements dissociatifs. Le développement du secondary streamer est donc lumineux. Son influence est également primordiale sur la production de molécules excitées sur des niveaux vibrationnels, la montée en température du gaz et la dynamique du gaz. Ces phénomènes seront décrits dans le paragraphe IV de ce chapitre.

III.5 Décharges en régime de tension pulsée et réacteurs multi-pointes

En configuration d'électrodes métalliques, deux régimes de tension peuvent générer une décharge couronne de type streamer : les régimes continu et pulsé. Dans le cas d'un régime de

tension pulsée et avec une faible largeur d'impulsion, la décharge présente une forte arborescence (voir la figure I.14a), alors que sous tension continue et comme nous venons de le voir, la décharge se présente sous la forme d'un filament unique s'étirant de la pointe vers le plan (voir figure I.11). En effet, la structure mono filamentaire des décharges couronnes sous tension continue provient d'un effet mémoire des décharges successives qui apparaissent à une fréquence de répétition de 10 kHz. La figure I.14b montre le développement simultané des décharges dans un réacteur présentant 6 pointes et sous tension pulsée. Les modifications de la répartition du champ géométrique ainsi que l'influence des décharges entre-elles conduisent à limiter le développement du branching sauf pour les décharges les plus externes. En régime de tension continu, la structure mono-filamentaire est dominante.

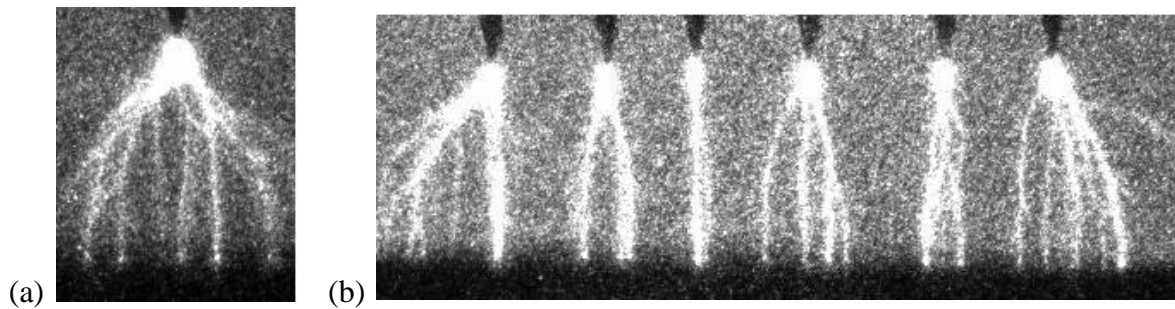


Figure I.14: Images ICCD des décharges couronnes sous tension pulsée (temps d'exposition = 10ms, distance inter-électrode = 8mm, $V_{\max} = 8\text{kV}$, durée du pulse = $40\mu\text{s}$, fréquence de répétition 100Hz) : (a) cas mono-pointe (Dubois 2006), (b) cas multipointes (Abahazem 2009).

L'effet mémoire des décharges est visible sur la figure I.15 où un échelon de tension est appliqué sur une seule pointe. L'évolution temporelle obtenue à l'aide d'une streak camera montre que la première décharge présente une structure arborescente. Cette structure se modifie progressivement jusqu'à présenter un seul filament. Cette modification est due aux effets mémoires d'une décharge sur l'autre et notamment aux développements des secondary streamers dont l'extension est représentée sur la figure I.15 par la courbe en pointillés rouge. Sous tension pulsée, les valeurs du courant instantané sont environ 10 fois plus élevées car la décharge propage simultanément plusieurs canaux de conduction.

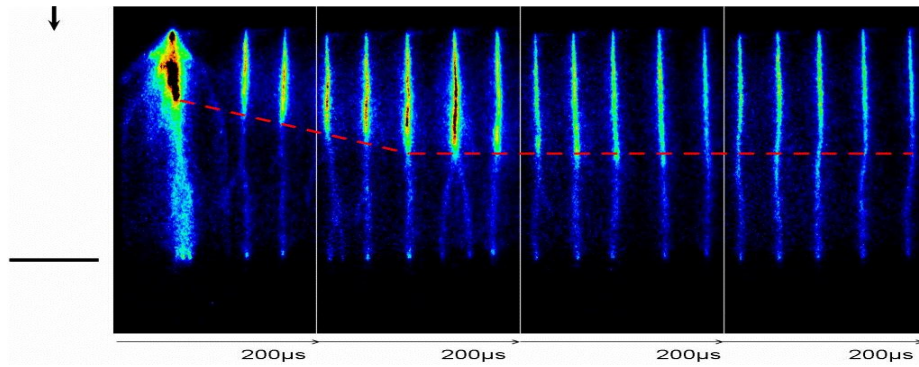


Figure I.15: Images streak du développement des 18 premières décharges dans un échelon de tension (distance inter-électrode = 7mm, $V_{\max} = 7,8$ kV) (Dubois 2006).

IV. Phénomènes physico-chimiques induits par les décharges couronnes

Lorsque les décharges traversent le milieu gazeux, de nombreux phénomènes sont induits dans les réacteurs corona suite à l'interaction des espèces chargées avec les molécules neutres du gaz. Ces phénomènes sont de nature hydrodynamique, thermique et cinétique. Dans la suite de ce chapitre, nous allons décrire ces différents phénomènes.

IV.1 Vent ionique

La génération d'un vent ionique par les décharges couronnes a été mise en évidence il y a très longtemps et a été largement étudié dans le cas d'une décharge couronne entre une pointe et un plan (Batina 2001) (Robinson 1961) (Goldman 1993) (Ballereau 1980). Sous l'effet de la décharge, des espèces chargées (ions positifs, négatifs ou électrons) sont accélérées par le champ électrique, par la force Coulombienne, et transmettent une partie de leur quantité de mouvement aux particules neutres lors des collisions. Le transfert étant proportionnel au rapport des masses des particules en collision, le processus est efficace uniquement lors des collisions ion-neutre. L'accélération du gaz dans l'espace inter-électrodes sous l'effet de la décharge génère un flux de gaz couramment appelé vent électrique ou vent ionique. Il est en partie responsable de la dispersion du mélange des espèces actives (radicaux, molécules excitées) dans le gaz. Dans une configuration pointe-plan, le vent ionique va toujours de la pointe vers le plan, quelle que soit la polarité de la pointe. Lorsque la pointe est positive, le

vent ionique est produit par les ions positifs créés par ionisation. Dans le cas d'une pointe négative, le vent ionique est issu des ions négatifs obtenus par processus d'attachement.

Le vent ionique est généré aussi bien par des décharges couronnes en régime glow (Zhelezniak 1982) (Robinson 1961) (Goldman 1993), qu'en régime de breakdown streamer (Batina 2001) (Loiseau 2002).

Dans le premier cas, le vent ionique est généré par la zone de dérive ionique (voir la figure I.10) qui est un cône dont le sommet se confond avec la pointe et dont la base est un disque de rayon à peu près égal à la distance inter-électrode (Goldman 1993). Le régime de décharge est stationnaire et le vent ionique est proportionnel à la racine carrée du courant de décharge.

L'expression proposée par Goldman (Goldman 1993) en 1993 donne $u = \sqrt{\frac{IZ}{\omega_i \rho A_G}}$ où u est la vitesse du gaz neutre, Z la distance inter-électrode, ω_i la mobilité des ions, ρ la masse volumique du gaz, I le courant de la décharge et A_G la section de la décharge couronne sur le plan cathodique.

Dans le régime de breakdown streamer, la zone de transfert de quantité de mouvement est confinée dans les filaments de la décharge. Cependant, les effets combinés de la fréquence de répétition des décharges (de l'ordre de la dizaine de kHz), de la dynamique des décharges (fort champ électrique et charge d'espace importante) et de l'augmentation de la température du gaz (Spyrou 1992) (Loiseau 2002) sont à même d'induire un mouvement ordonné du gaz par transfert de quantité de mouvement des ions vers les neutres. Les vitesses des vents ioniques peuvent atteindre 10 à 30 m.s⁻¹.

Si la décharge électrique se produit au voisinage d'une surface, le transfert de quantité de mouvement entre particules chargées et particules neutres peut modifier la couche limite de l'écoulement. Dans ce cas, le vent ionique peut servir à recoller les couches limites d'un gaz en écoulement le long d'une paroi (voir par exemple (Labergue 2004) (Léger 2001)). L'intérêt principal du recollement de la couche limite est de réduire la traînée (zone de turbulence) est

ainsi d'améliorer les propriétés aérodynamiques (cas des véhicules terrestres) et/ou de portance (cas des avions) pour in fine réduire la consommation énergétique.

IV.2 Phénomènes thermiques

Les échanges d'énergie particules chargées-neutres sont complexes et peuvent prendre plusieurs formes. Les particules chargées acquièrent de l'énergie dans le champ électrique et la transfèrent aux neutres (particules majoritaires du gaz) durant les collisions élastiques et inélastiques.

Les collisions élastiques désordonnées (par opposition au transfert de quantité de mouvement responsable du vent ionique) induisent une élévation instantanée de la température du gaz. A l'inverse, les collisions inélastiques modifient l'énergie interne des molécules qui peuvent s'ioniser et se dissocier ou s'exciter sur différents états de rotation, de vibration et électroniques. Après un certain temps, cette énergie interne est redistribuée dans le gaz et conduit également à son échauffement. Cependant, et contrairement aux processus élastiques, la relaxation en énergie thermique des états excités se fait sur des délais de temps plus ou moins longs en fonction de la nature de l'excitation moléculaire. La dynamique des effets induits n'est donc pas la même.

IV.2.1 Choc thermique et onde de pression

Parmi l'ensemble des processus collisionnels, seules les collisions élastiques chauffent directement le gaz en augmentant l'énergie d'agitation des molécules neutres. On peut également supposer que la relaxation de l'énergie accumulée par les molécules sur des niveaux d'excitation rotationnelle et électronique radiatif soit quasiment instantanée. En effet, à la pression atmosphérique, compte tenu du nombre important de collisions et de la faible différence d'énergie entre deux niveaux rotationnels (de l'ordre de 10^{-4} eV), l'équilibre translation-rotation est quasi immédiat. Par contre, pour les états électroniques relaxant par émission de photon, les durées de vie radiative peuvent être de plusieurs nanosecondes. En fait, l'hypothèse d'instantanéité revient à considérer que la relaxation s'effectue sur des échelles de temps petites en comparaison de la durée d'une décharge et surtout du temps d'inertie du fluide neutre porteur de la décharge. La relaxation « instantanée » de cette énergie

induit un choc thermique au voisinage de l'électrode de plus faible rayon de courbure là où la concentration d'énergie est la plus forte. Les gradients de pression résultants engendrent alors une onde de pression qui se propage dans le volume du gaz. En 1997, Eichwald et al (Eichwald 1997) ont simulé le comportement hydrodynamique du gaz neutre dans une décharge couronne en configuration fil-cylindre. Ils ont montré que le choc thermique conduisait à une augmentation de la température du gaz au voisinage de l'anode et génèrait une onde de pression cylindrique. En 2004, Ono et al. (Ono 2004) ont observé par spectroscopie Schlieren et pour une décharge couronne de configuration pointe-plan, la propagation d'une onde de choc sphérique centrée sur la pointe et se développant vers le plan (voir la figure I.16 (Ono 2004)). Récemment Kacem et al. (Kacem 2010) ont réussi à simuler le développement du même type d'onde sphérique à partir de la pointe sur une échelle de temps de $4\mu\text{s}$. Ces ondes se propagent avec la vitesse du son.

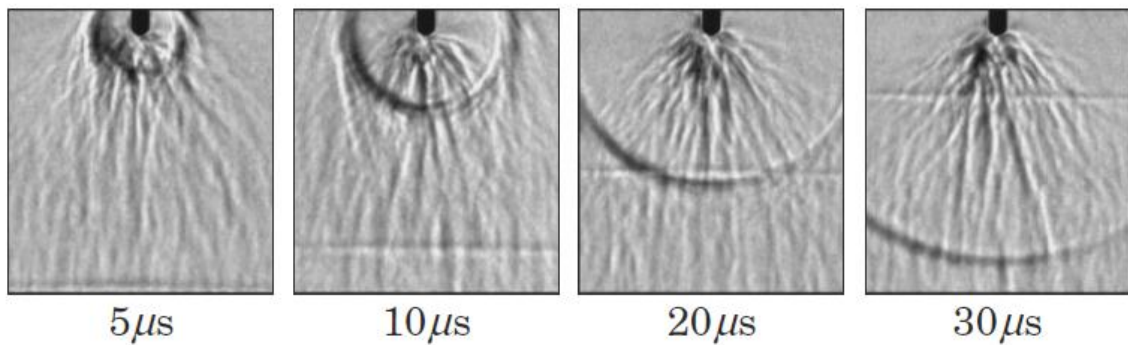


Figure I.16 : Propagation spatio-temporelle de l'onde de choc entre la pointe et le plan (Ono 2004).

IV.2.2 Réservoir d'énergie vibrationnelle

Les temps de relaxation en énergie thermique de l'énergie accumulée par les molécules excitées sur des niveaux vibrationnels sont plus longs. Ils diffèrent en fonction des états d'excitation vibrationnelle. Cependant, les échelles de temps sont toutes contenues dans un intervalle qui varie de la microseconde jusqu'à plusieurs centaines de microsecondes. Ainsi, les états vibrationnels constituent un réservoir d'énergie qui relaxe en énergie thermique entre deux phases de décharges. Les états vibrationnels se répartissent de manière plus ou moins uniforme tout le long des canaux ionisés. L'échauffement du gaz, suite à leur relaxation,

forme ainsi des empreintes thermiques des filaments de décharges. Ces empreintes thermiques ont été observées par spectroscopie Schlieren dans les travaux de Creighton (Creighton 1994) et sont également visibles sur la figure I.16. Les travaux de modélisation d'Eichwald (Eichwald 1997) ont montré que la température dans les canaux ionisés pouvait s'élever d'une dizaine à une centaine de degrés Kelvin.

IV.3 Phénomènes chimiques

Les techniques de décontamination (biologiques et chimiques) utilisant les décharges électriques dans les gaz reposent sur l'efficacité de production d'espèces hautement réactives (radicaux, espèces excitées), processus prenant naissance dans le plasma non-thermique. On peut tout d'abord noter que le degré d'ionisation des plasmas que nous étudions est faible, voisin de 10^{-5} à 10^{-6} (ce qui signifie qu'une espèce chargée est entourée en moyenne de près de 100 000 à 1 million de molécules neutres). Cette constatation, couplée au fait que les décharges filamenteuses occupent un très faible volume, indique que la probabilité de rencontre entre une espèce chargée et un polluant est trop faible pour être efficace. En fait, les décharges électriques produisent des espèces excitées et des radicaux qui diffusent dans le volume et interagissent avec le milieu à traiter (polluants, bactéries, surface, etc.). Dans le cas de la dépollution des gaz, cela explique pourquoi les procédés plasmas ne sont efficaces que lorsque les polluants sont présents en très faible concentration dans le milieu (quelques centaines de ppm) car les radicaux sont produits en concentration stœchiométrique relativement à la concentration des polluants.

Les espèces actives sont générées dans un réacteur corona au cours deux phases distinctes:

- la phase de décharge dans laquelle sont créés des espèces excitées et des radicaux primaires par collisions inélastiques entre les molécules du gaz et les électrons ;
- la phase de post-décharge (entre deux phases successives de décharge) durant laquelle des radicaux secondaires sont créés à partir des radicaux primaires ;

IV.3.1 Cinétique de la phase de décharge

Pendant la construction de la charge d'espace à proximité de l'anode et durant la propagation du streamer, la formation des espèces actives est gouvernée par les processus d'impact électronique avec les molécules majoritaires du gaz. Comme nous l'avons dit dans la partie précédente, les électrons sont accélérés par le champ électrique intense et acquièrent une énergie cinétique importante. Les collisions inélastiques modifient la structure électronique des molécules neutres. Elles peuvent donc mener à des processus d'excitation des modes internes, de dissociation, d'ionisation et d'attachement.

Les collisions inélastiques (à l'exception des processus d'attachement) ne peuvent se produire que si l'énergie relative des deux espèces en interaction est supérieure à une valeur seuil de collision. Ainsi, une collision entre une molécule d'azote et un électron ne peut mener à un processus de dissociation que si l'énergie de l'électron est supérieure au seuil de dissociation qui vaut 9,7 eV. Le tableau I.1 donne les valeurs de l'énergie seuil des processus pour les molécules de l'air sec. On constate que les collisions menant à des processus chimiques ont une énergie de seuil importante. Seuls les électrons ayant une énergie importante pourront donc induire ces réactions. Ceci explique le rôle central que jouent les électrons, espèce qui possède l'énergie moyenne la plus élevée, dans la réactivité des plasmas. Cependant, les électrons possédant l'énergie nécessaire sont ceux présents à l'intérieur de la tête du streamer dans la phase de propagation du primary streamer où ceux générés lors de l'extension du secondary streamer. Les électrons dans le canal ionisé ont des énergies trop faibles.

Dans l'air ambiant, en plus des espèces excitées (métastables ou non), les radicaux primaires formés durant la phase de décharge sont les atomes N, H et O (également créés par attachement dissociatif) et la molécule OH.

Molécules	N ₂	O ₂
Energie de dissociation (eV)	9,756	5,118
Energie d'ionisation (eV)	15,58	12,07
Energie de vibration (eV)	0,293	0,192
Energie de rotation (eV)	4,98 10 ⁻⁴	3,55 10 ⁻⁴

Tableau I.1: Energies seuil de dissociation, d'ionisation, de vibration et de rotation des molécules de l'air sec.

IV.3.2 Cinétique de la phase de post-décharge et bilan

La phase de post-décharge est décalée spatialement et temporellement par rapport à la phase de décharge. En effet, la cinétique chimique activée par la production des radicaux primaires se délocalise progressivement dans tout le volume du gaz à cause des phénomènes de transport induits par les décharges elles-mêmes et/ou à cause d'un flux initial du gaz traversant le réacteur. A cause des vitesses des réactions mises en jeu, les radicaux primaires produisent dans un premier temps essentiellement des radicaux secondaires (tels que H₂O₂, HO₂, O₃, etc). Le réacteur corona est donc surtout générateur d'espèces oxydées. En effet, bien que la molécule d'oxygène soit présente en plus faible concentration dans l'air, son seuil de dissociation est environ deux fois plus faible que celui de la molécule d'azote. Le radical O est donc produit en concentration importante ainsi que les radicaux hydroxyles.

Les espèces radicalaires produites par la décharge interagissent ensuite avec les polluants pour les détruire ou les transformer. Au fur et à mesure du passage des décharges, l'énergie transférée au gaz par les processus d'impact électronique va continuer à former de nombreuses espèces chimiques actives qui vont réagir entre elles ainsi qu'avec les molécules du gaz et les espèces à traiter pour former de nouvelles espèces stables (sous produits résultant des transformations). L'énergie thermique produite va également relaxer ce qui peut conduire à une élévation de la température moyenne du traitement. La caractérisation des sous-produits formés est primordiale. Ces derniers peuvent être inoffensifs (traitement direct des polluants

par décharge) où nécessiter un complément de traitement. Ce dernier peut être apporté par des surfaces catalytiques généralement plus performantes lorsque le milieu et les espèces sont pré-oxydés par les décharges, où par l'adjonction d'autres espèces chimiques pour finaliser le traitement. A titre d'exemple, et dans le cas du traitement d'un gaz pollué par des oxydes d'azote et de soufre, le réacteur corona génère in-situ des acides nitriques et sulfuriques qui sont neutralisés en sels par l'adjonction d'ammoniac. Le processus de la dépollution des gaz d'échappements est donné sur la figure I.17.

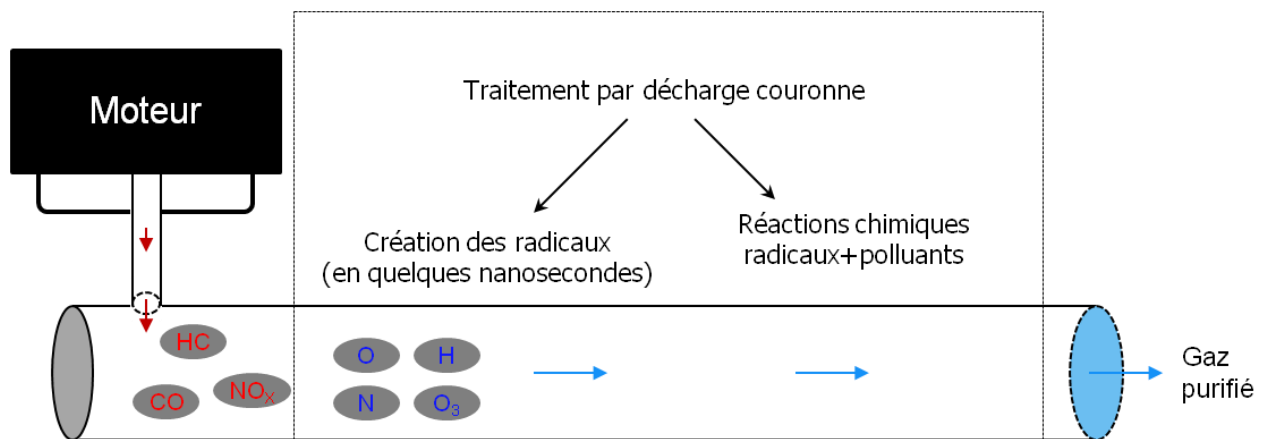


Figure I.17 : Schéma des principales étapes de processus de la dépollution par décharge couronne

V. Conclusion

Ce premier chapitre a permis de faire un point sur les différents modes de génération des plasmas non thermiques à la pression atmosphérique. Nous nous sommes ensuite focalisés sur les propriétés des décharges couronne, objets de notre étude.

Les décharges couronnes ayant une morphologie filamentaire de type streamer à la pression atmosphérique, nous avons décrit dans la deuxième partie de ce chapitre les différents mécanismes à l'origine de leur formation et de leur propagation, ainsi que les principaux processus réactionnels influençant leur développement. Nous avons ensuite précisé les différents phénomènes électro-hydrodynamiques, thermiques et chimiques qui apparaissent lors de la propagation et la relaxation des décharges.

Le bilan de l'ensemble des phénomènes qui apparaissent lors des décharges couronnes va nous permettre de choisir le modèle mathématique adéquat permettant de les simuler. Ainsi, le chapitre suivant est consacré à la description des équations et des hypothèses du modèle des phases de décharge et de post-décharge ainsi que de leur couplage, à la présentation d'un état de l'art des simulations déjà réalisées par la communauté scientifique et à la présentation du logiciel utilisé dans le cadre de cette thèse.

Chapitre II : Modèle pour la simulation des réacteurs corona et logiciel de résolution

I. Introduction	51
II. Description du modèle mathématique	52
II.1 Introduction	52
II.2 Concept de milieu continu et modèle fluide.....	52
II.3 Description eulérienne et lagrangienne	54
II.4 Modèle électro-dynamique du streamer	54
II.5 Modèle d'écoulement d'un gaz neutre réactif.....	57
II.5.1 Types d'écoulements.....	57
II.5.2 Equation de conservation de la masse	58
II.5.3 Equation de conservation de la quantité de mouvement	59
II.5.4 Equation de conservation des espèces chimiques	60
II.5.5 Equation de conservation de l'énergie	62
II.5.6 Modèle de turbulence k- ϵ standard :	65
II.5.7 Modèle de turbulence RNG k- ϵ (ReNormalisation Group):	66
II.5.8 Modèle des tenseurs de Reynolds	67
II.5.9 Coefficients de diffusion massique	68
II.5.10 Relations de fermeture	69
II.6 Phénomènes de couplages	70
III. Etat de l'art de la simulation des réacteurs corona	71
IV. Le logiciel FLUENT : un outil de résolution du modèle	74
IV.1 Choix du maillage	77
IV.2 Méthodes de discrétisation	78
IV.3 Méthode numérique de FLUENT	81
IV.3.1 Résolution du couplage pression-vitesse dans le cas d'un écoulement incompressible.....	81
IV.3.2 Conditions aux limites et conditions initiales	81
IV.3.3 Convergence	82
V. Conclusion	82

Chapitre II. : Modèle pour la simulation des réacteurs corona et logiciel de résolution

I. Introduction

Un modèle permet de décrire les phénomènes de la nature à l'aide d'équations mathématiques validées. Les solutions du modèle permettent d'interpréter et d'analyser les résultats d'une expérience en modifiant par exemple des données opératoires et géométriques. Dans la plupart des cas, la solution analytique d'un modèle n'est accessible qu'après un nombre important de simplifications et d'hypothèses réductrices. Une solution complète demande le plus souvent l'utilisation d'un logiciel de simulation et l'emploi d'algorithmes spécifiques. Les solutions issues de ces logiciels donnent alors une description détaillée des différents phénomènes. Leur relative souplesse d'utilisation et de paramétrage permet de réduire les coûts des essais expérimentaux (pour le choix d'un design par exemple) et de tester différentes géométries pour déterminer leur pertinence et leur faisabilité. Dans notre cas, les modèles hydrodynamiques (appelés aussi modèles fluides) constituent la base de la simulation d'un réacteur de décontamination.

Dans ce chapitre nous allons tout d'abord décrire les hypothèses et le système retenu d'équations mathématiques permettant de modéliser l'interaction d'un écoulement réactif avec des décharges couronnes de type streamer. Ce modèle mathématique doit être à même de reproduire l'ensemble des phénomènes électriques, dynamiques, énergétiques et chimiques décrits dans le chapitre I. Nous présenterons ensuite les hypothèses de couplage décharge/dynamique du gaz réactif ainsi que le logiciel de simulation FLUENT qui sera

développé et ajusté spécifiquement à la modélisation d'un gaz réactif activé par décharge couronne.

II. Description du modèle mathématique

II.1 Introduction

Nous avons vu dans le chapitre I précédent que les décharges couronnes filamenteuses de type streamers résultent du transfert d'énergie des électrons vers les molécules neutres lors d'un ensemble complexe de collisions microscopiques. Pour modéliser l'évolution des espèces dans un plasma, il existe principalement deux niveaux de description la description microscopique et la description macroscopique.

La description microscopique des phénomènes et des processus collisionnels est réalisée par des modèles particuliers (Kunhardt 1988) (Wu 1988). L'inconvénient de ces modèles est la durée de calcul qui est très élevée ainsi que la taille mémoire nécessaire pour suivre un nombre représentatif de particules. A la pression atmosphérique, ce nombre doit être important pour décrire correctement les phénomènes et, dans le cas de l'étude des décharges électriques, il devient rapidement très grand à cause des avalanches électroniques qui démultiplient le nombre d'espèces chargées. Dans la description macroscopique utilisée dans notre travail, les différentes propriétés du plasma sont décrites par des grandeurs macroscopiques moyennées telles que la densité, la vitesse et l'énergie moyenne. Le modèle mathématique est ainsi simplifié mais la description des phénomènes reste suffisamment fine avec des durées de calcul raisonnables. Dans un modèle fluide, les grandeurs microscopiques (vitesse des particules, section efficace, fonction de distribution) peuvent être remplacées par des grandeurs physiques moyennes (densité, fréquence de réaction, vitesse et énergie moyenne) si le concept de milieu continu est valide.

II.2 Concept de milieu continu et modèle fluide

Un fluide est un milieu matériel continu, déformable et qui peut s'écouler. La continuité du milieu est vérifiée si le nombre de particules physiques contenues dans un volume élémentaire

est suffisamment grand pour que l'on puisse négliger toute fluctuation de ce nombre (Pérez 2001). Le volume élémentaire est donc choisi suffisamment grand pour contenir un nombre représentatif de particules (permettant le calcul d'une moyenne) et suffisamment petit pour être traité d'un point de vue macroscopique. D'après les études d'Eichwald (Eichwald 2006), Pancheshnyi (Pancheshnyi 2005) et Hallac (Hallac 2003), nous pouvons dire que la densité des électrons, à pression atmosphérique, dans le canal d'un streamer est de l'ordre de 10^{20} à 10^{22} m^{-3} . Ainsi, un volume élémentaire de $1 \mu\text{m}^3$ renferme entre 100 et 10000 électrons (Ducasse 2006). Ce même volume contient plus de 10^7 molécules neutres. Ces valeurs valident la possibilité de moyenniser les grandeurs physiques microscopiques et assurent que les grandeurs moyennes macroscopiques obtenues sont peu fluctuantes pour un instant et une position donnée. D'un autre point de vue, on peut considérer qu'un milieu est continu si toute distance caractéristique du fluide est très grande devant le libre parcours moyen (λ) des particules. Le tableau II.1 donne le libre parcours moyen de quelques molécules et atomes à la pression atmosphérique et à la température ambiante (Ruste). Pour les électrons et les particules chargées, ce libre parcours moyen est estimé à quelques dixièmes de micromètre pour les mêmes conditions thermodynamiques (Lozansky 1969).

Gaz	Diamètre de collision d (Å°)	λ (nm)
N ₂	3,77	63,3
O ₂	3,75	70,1
Air	3,75	66,1

Tableau II.1: Libres parcours moyens de quelques molécules à la pression atmosphérique et à 300K (Ruste)

Ces éléments nous permettent de décrire le comportement moyen de chaque espèce (chargées ou non) dans un réacteur corona à l'aide d'une description fluide. Cela revient à considérer plusieurs modèles fluides (un pour chaque espèce) en interaction entre eux et avec les champs électriques.

Pour décrire le mouvement des particules fluides, deux descriptions mathématiques sont utilisées en mécanique des fluides: la description Eulérienne et la description Lagrangienne. Ces deux descriptions vont être décrites dans le paragraphe suivant.

II.3 Description eulérienne et lagrangienne

La description des écoulements est faite, dans la très grande majorité des cas, à partir d'un champ de vitesse moyenne \bar{u} défini comme une fonction des variables du temps t et d'espace \vec{r} : $\bar{u}(\vec{r}, t)$. C'est-à-dire qu'on définit la vitesse moyenne du fluide dans tout volume élémentaire de l'espace, de grande dimension devant les distances intermoléculaires et les libres parcours moyens mais dont la taille se confond avec un point à l'échelle de l'étude. Du point de vue expérimental, cette description dite « eulérienne » correspond à une mesure du champ de vitesse en un très grand nombre de points de l'écoulement et pour des instants très proches. Cette description est utilisée pour décrire le mouvement du fluide dans son ensemble. L'étude globale du mouvement du fluide nécessite alors de découper l'espace en volumes élémentaires (respectant les conditions de continuité du milieu) et de suivre les échanges des grandeurs physiques (densité, vitesse et énergie moyenne) du fluide à l'aide d'équations de bilan appliquées à chaque volume. Dans cette description, on étudie le bilan des échanges de particules fluides et des grandeurs physiques qu'elles transportent à l'intérieur de chaque volume élémentaire. Si le champ de vitesse eulérien ne dépend pas du temps, l'écoulement est qualifié de stationnaire, et s'il dépend du temps, l'écoulement est dit instationnaire.

La description « lagrangienne » consiste à suivre le mouvement d'une particule de fluide au cours du temps dans un repère d'étude qui se déplace avec la particule considérée.

Pour notre étude, nous avons utilisé la description eulérienne du mouvement.

II.4 Modèle électro-dynamique du streamer

Dans l'approximation fluide, le modèle adopté pour suivre la propagation de la décharge couronne de type streamer est le modèle hydrodynamique d'ordre 1 (Eichwald 2006). Ce modèle donne suffisamment d'informations sur la propagation et la morphologie des streamers durant les phases de décharge. Il permet aussi de connaître l'ensemble des

paramètres importants (comme l'énergie et la densité des espèces chargées, la répartition du champ électrique dans l'espace inter-électrode, etc.) pour calculer la production d'espèces actives et l'énergie déposée dans le gaz neutre.

Le modèle d'ordre 1 est obtenu en prenant les deux premiers moments de l'équation de Boltzmann (c'est-à-dire l'équation de continuité et l'équation de quantité de mouvement) pour chaque espèce chargée, couplés avec l'équation de Poisson pour le calcul du champ électrique de charge d'espace (Grangé 1997) (Babaeva 1996) (Georghiou 1999) (Pancheshnyi 2001) (Dhali 1987) (Hallac 2003) (Eichwald 2006). Dans ce modèle, l'équation de transport de la quantité de mouvement est simplifiée grâce à l'approximation de dérive-diffusion, ce qui permet de calculer directement la vitesse moyenne des particules chargées sans avoir besoin de résoudre la totalité de l'équation (Ducasse 2006). La vitesse moyenne obtenue par cette approximation est la somme d'une vitesse de dérive (proportionnelle à la mobilité des espèces chargées dans un champ) et d'une vitesse de diffusion (proportionnelle aux gradients de densité). Finalement, le modèle d'ordre 1 regroupe le système d'équations suivant ;

$$\Delta(\varepsilon_0 \varepsilon_r V) = -\sum q_s n_s, \quad (\text{II.1})$$

$$\frac{\partial n_s}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot n_s \vec{u}_s = S_s \left(\frac{E}{n} \right) \quad (\text{II.2})$$

$$\vec{u}_s = \vec{u}_{s,dérive} + \vec{u}_{s,diffusion} \quad (\text{II.3})$$

$$\vec{u}_{s,dérive} = \omega_s \left(\frac{E}{n} \right) \vec{E}, \quad \vec{u}_{s,diffusion} = -\frac{D_s \left(\frac{E}{n} \right)}{n_s} \vec{\nabla} n_s \quad (\text{II.4})$$

$$\vec{E} = -\vec{\nabla} V \quad (\text{II.5})$$

L'équation (II.1) est l'équation de Poisson. V représente le potentiel et q_s la charge portée par l'espèce s . ε_0 et ε_r sont respectivement la permittivité du vide et la permittivité relative du milieu. Enfin, n_s est la densité des espèces chargées « s » (comme par exemple e , N_2^+ , O_2^+ , O^- , O^+ , etc.). L'équation (II.2) est l'équation de conservation de la densité pour chaque espèce

chargée « s ». Le terme source S_s représente les processus collisionnels de création et de disparition de l'espèce « s » (comme l'ionisation, la recombinaison et l'attachement) ainsi que les processus d'émission secondaire (comme la photo-ionisation et la photo-émission aux parois) (Kulikovsky 2000) (Hallac 2003) (Ségur 2006) (Eichwald 2011). Les équations (II.3) et (II.4) sont la traduction de l'équation de transport de la quantité de mouvement dans le cadre de l'approximation de dérive-diffusion. Elles déterminent la vitesse moyenne des particules, où ω_s est la mobilité de l'espèce chargée « s » et D_s le coefficient de diffusion. L'équation (II.5) permet d'estimer le champ électrique à partir du potentiel appliqué.

Le système d'équations est fermé au moyen de l'approximation du champ électrique local (Guo 1993) (Papadakis 2005) (Eichwald 2006). Elle suppose que les coefficients de transport (ω_s et D_s) et de réaction (contenus dans S_s) soient uniquement fonction du champ électrique local réduit E/n ou E est le champ électrique et n la densité du gaz. Cette approximation consiste à considérer que la fonction de distribution atteint un état d'équilibre quasi instantanément en réponse à l'application d'un champ électrique. Cette hypothèse est valide si la durée de relaxation de la fonction de distribution en énergie et en quantité de mouvement des espèces chargées est faible devant toutes variations caractéristiques du champ électrique dans la décharge. Vitello et al. ont montré la validité de cette hypothèse par la résolution de l'équation de Boltzmann (Vitello 1992).

Concernant les termes sources S_s de création et de disparition des espèces chargées, on trouve :

- L'ionisation, l'attachement et la recombinaison en volume par interaction électron-neutre, électron-ion et ion-ion (terme source collisionnel),
- L'ionisation par interaction entre les molécules du gaz et les photons (Photo-ionisation) (Kulikovsky 2000),
- L'émission d'électrons de la cathode sous l'action des photons (effet photoélectrique) (Georghiou 2001) (Kunhardt 1988) et des ions positifs (bombardement ionique).

On peut noter que le système d'équations est très fortement couplé. En effet, chaque variation de la densité d'une espèce chargée « s » est susceptible de modifier le champ électrique (par l'intermédiaire de la densité de charge d'espace dans l'équation de Poisson) et d'affecter l'évolution de toutes les autres espèces puisque tous les coefficients de transport et de réaction

dépendent du champ électrique. La dynamique de la décharge s'en trouve donc modifiée. Ainsi, la résolution d'un tel modèle aussi fortement couplé demande l'emploi de méthodes numériques performantes et rapides avec une définition de maillage suffisamment fine pour suivre la dynamique des ondes d'ionisation dans la tête des streamers. Un logiciel performant a été développé au sein du groupe dans une configuration 2D cylindrique et en version parallèle (Ducas 2006).

II.5 Modèle d'écoulement d'un gaz neutre réactif

Le système d'équations que nous allons utiliser dans ce modèle est basé sur les équations de Navier-Stokes instationnaires appliquées à un mélange réactif. Ces équations vont être adaptées au cas d'un réacteur corona de dépollution des gaz en rajoutant des termes sources d'origine chimique, thermique et de quantité de mouvement modélisant l'interaction de la décharge avec l'écoulement de gaz neutre réactif. Une équation de conservation de la densité d'énergie des espèces vibrationnelles sera également rajoutée. Enfin, des termes spécifiques modélisant les phénomènes de turbulence seront pris en compte en fonction du régime d'écoulement.

II.5.1 Types d'écoulements

Dans ce paragraphe nous allons donner une description qualitative rapide de quelques types d'écoulements.

Écoulements incompressible et compressible: Tous les fluides étant plus ou moins compressibles, la condition d'incompressibilité ($\vec{\nabla} \cdot \vec{u} = 0$) revient à considérer comme négligeables les influences de la pression et de la température sur la masse volumique, ce qui veut dire que la masse volumique ne varie pas. D'autre part, un gaz peut être considéré comme incompressible si le nombre de Mach ($Ma = \frac{\bar{u}}{a} < 0.2$, où a est la vitesse du son) (Candel 2001) (Brancher 2008) et la variation de température sont faibles tous les deux. Les petites variations de densité qui sont à l'origine des mouvements de convection naturelle sont prises

en compte grâce à l'hypothèse de Boussinesq (Gartling 1985) par un terme source dans les équations de conservation de la quantité de mouvement.

Écoulement laminaire : On dit qu'un écoulement est laminaire lorsque le mouvement des particules fluides se fait de façon régulière et ordonnée. Ce type d'écoulement apparaît lorsque le nombre de Reynolds (Re) est faible :

$$Re = \frac{\bar{u} L}{\nu}$$

Où \bar{u} est une vitesse moyenne typique de l'écoulement, L une longueur caractéristique et ν la viscosité cinématique du fluide. Lorsque le nombre de Reynolds est faible, les lignes de courant sont stationnaires et l'écoulement est dit laminaire. Pour des faibles vitesses, ce régime d'écoulement est le plus adapté à la simulation du fait de sa facilité d'utilisation et de son accord généralement bon avec la réalité.

Écoulement turbulent : La plupart des écoulements naturels, rencontrés dans l'industrie ou d'intérêt technologique, sont turbulents. La turbulence (Monin 1975) (Brancher 2008) apparaît dans des écoulements dont le nombre de Reynolds est élevé. Elle a souvent pour origine le développement d'une instabilité dans un écoulement laminaire. Lorsque le nombre de Reynolds dépasse une valeur critique (Re_c), les petites perturbations de l'écoulement deviennent instables et leur croissance rapide produit la transition vers la turbulence. Cette valeur critique est de $5 \cdot 10^5$ (Candel 2001) lorsqu'il s'agit d'un écoulement de couche limite sur une plaque plane et de 2500 lorsqu'il s'agit d'un écoulement dans une conduite cylindrique.

En fonction du type d'écoulement les équations du modèle sont plus ou moins complexes. Nous allons dans les paragraphes suivants décrire chaque équation intervenant dans un modèle de type Navier-Stokes appliqué à un mélange réactif avec ou sans effet de turbulence.

II.5.2 Equation de conservation de la masse

L'équation de conservation de la densité de masse totale d'un mélange gazeux s'écrit :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \rho \vec{u} = 0 \quad (\text{II.6})$$

$\rho = nm$ est la densité de masse avec n la densité du gaz et m la masse d'une molécule équivalente du gaz, égale à la moyenne pondérée des molécules composant le mélange. Cette équation est valable pour les écoulements incompressible et compressible. Bien que le gaz soit traversé par des décharges électriques, le second membre de l'équation (II.6) reste nul. En effet, pour des plasmas froids non thermique possédants un faible degré d'ionisation (10^{-5} - 10^{-6}), nous pouvons supposer que les réactions d'ionisation du gaz n'affectent pas la concentration moyenne des molécules neutres.

II.5.3 Equation de conservation de la quantité de mouvement

Après avoir fait le bilan de quantité de mouvement dans un volume élémentaire du gaz, nous obtenons l'équation de conservation de la quantité de mouvement suivante :

$$\frac{\partial \rho \vec{u}}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \rho \vec{u} \vec{u} = -\vec{\nabla} P - \vec{\nabla} \cdot \vec{\tau} + \vec{S}_{qm} \quad (\text{II.7})$$

Le membre $\frac{\partial \rho \vec{u}}{\partial t}$ exprime la quantité d'accélération du fluide par unité de volume, $(\vec{\nabla} \cdot \rho \vec{u} \vec{u})$ est le terme de transport convectif de quantité de mouvement (qui rend l'équation de Navier-Stokes non linéaire d'où sa complexité de résolution). Les termes situés à droite de l'équation (II.7) modélisent respectivement les effets des forces de pression et des contraintes visqueuses sur l'écoulement.

Dans l'équation (II.7), P est la pression statique, $\vec{\tau} = [\tau_{ij}]$ le tenseur des contraintes visqueuses et \vec{S}_{qm} est le terme source de transfert de quantité de mouvement des particules chargées vers le gaz neutre. Dans l'approximation de Navier-Stokes, les éléments du tenseur de viscosité s'expriment en fonction de la dérivée de la vitesse d'écoulement par les formules suivantes :

$$\tau_{ii} = -\mu(T) \left[2 \frac{\partial \bar{u}_i}{\partial x_i} - \frac{2}{3} \vec{\nabla} \cdot \bar{\vec{u}} \right] \quad (\text{II.8})$$

$$\tau_{ij} = \tau_{ji} = -\mu(T) \left[\frac{\partial \bar{u}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \bar{u}_j}{\partial x_i} \right] \quad (\text{II.9})$$

x_i et x_j représentent les composantes du vecteur position, u_i et u_j celles du vecteur vitesse. μ est le coefficient de viscosité dynamique, fonction de la température T du gaz.

Dans une première approximation, nous pouvons supposer que le gain moyen de quantité de mouvement des espèces chargées dans le champ électrique est totalement redistribué aux molécules neutres du gaz par les collisions électron-neutre et ion-neutre. Ainsi, nous pouvons écrire que :

$$\vec{S}_{qm} = \sum_s q_s n_s \vec{E} \quad (\text{II.10})$$

En effet, chaque particule chargée du plasma est accélérée dans le champ électrique par la force de Coulomb $q_s \vec{E}$. Un paquet d'espèces de densité n_s subit donc une force moyenne orientée égale à $q_s n_s \vec{E}$. Ce gain de quantité de mouvement moyen est redistribué au gaz neutre sous l'effet des collisions avec les espèces neutres.

II.5.4 Equation de conservation des espèces chimiques

Dans le cadre de la thermodynamique des processus irréversibles, il faut prendre en considération la réactivité des espèces chimiques dans le mélange. Bien entendu, la somme des concentrations de toutes les espèces « l » vaut un, soit $\sum_l \frac{\rho_l}{\rho} = 1$ où ρ_l est la densité de masse de chaque espèce « l ». S'il n'y a aucun effet de mélange entre espèces, on a simplement :

$$\frac{\partial \rho c_l}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \rho c_l \bar{\vec{u}} = S_l + S_{l_s} \quad \forall l \quad (\text{II.11})$$

c_l est la fraction massique de l'espèce « l », \bar{u} la vitesse moyenne d'écoulement du mélange gazeux, S_l est le taux net de la production par unité de volume (dû aux réactions chimiques entre espèces neutres) et $S_{l,s}$ simule la création de nouvelles espèces neutres actives pendant la phase de décharge par des collisions entre les électrons ou les ions avec les molécules principales de gaz.

Si maintenant, on admet qu'il y a un effet de mélange, c'est à dire que les espèces ne suivent plus uniquement les lignes de courant de l'écoulement mais diffusent autour, il faut ajouter un nouveau terme de flux de diffusion massique \vec{J}_l . Ce flux est le résultat de quatre mécanismes. Le premier vient de la présence de gradients de concentration, le second est lié aux gradients de pression qui peut provoquer un mouvement diffusif dans le mélange, le troisième est dû à la présence de gradients de température (effet Soret ou thermo-diffusion (Köhler 2002)). Enfin, le dernier est lié à l'application d'éventuelles forces extérieures (Merk 1959) (Bird 2006). Dans notre cas, les diffusions dues aux gradients de concentration et l'effet Soret sont prises en compte, sachant que les autres mécanismes ont des effets négligeables car ils n'interviennent que dans des cas très particuliers (Ansys Fluent 12.0). L'effet Soret décrit le couplage entre un gradient de température et un flux de masse résultant dans un mélange à plusieurs composants. Au final, les équations de conservation de la cinétique incluant la diffusion des espèces s'écrivent :

$$\frac{\partial \rho c_l}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \rho c_l \bar{u} + \vec{\nabla} \cdot \vec{J}_l = S_l + S_{l,s} \quad (\text{II.12})$$

où,

$$\vec{J}_l = -D_l \vec{\nabla}(\rho c_l) - D_l^T \frac{1}{T} \vec{\nabla} T \quad (\text{II.13})$$

D_l est le coefficient de diffusion de l'espèce « l » dans le mélange (appelé aussi coefficient de diffusion massique) et D_l^T est le coefficient de thermo diffusion. D'après la théorie cinétique des gaz (Bird 2006), ces deux coefficients de diffusion peuvent s'exprimer en fonction de coefficients spécifiques qui caractérisent le potentiel d'interaction des espèces en collision. Nous allons donner leurs expressions dans le paragraphe II.5.6.

On peut noter que les équations (II.12) sont très fortement couplées notamment à travers le terme source de cinétique chimique. En effet, si une espèce « l » réagit selon une dizaine de réactions, cela sous-entend que le terme S_l contient 10 termes eux-mêmes fonction de l'évolution des autres espèces dans le mélange. Chaque terme modélise une réaction chimique qui possède sa propre vitesse de réaction. Ces dernières pouvant différer les unes des autres de plusieurs ordres de grandeur, cela donne une rigidité très forte au système d'équations différentielles (II.12).

II.5.5 Equation de conservation de l'énergie

L'équation de conservation de l'énergie s'exprime en terme de conservation de l'enthalpie « h » qui est définie par :

$$h = \sum c_l h_l \quad (\text{II.14})$$

$$h_l = \int_{T_{ref}}^T C_{p,l} dT \quad (\text{II.15})$$

T_{ref} est la température de référence et $C_{p,l}$ est la chaleur spécifique à pression constante de l'espèce « l ». Donc avec ces hypothèses, l'équation de l'énergie s'écrit comme suit :

$$\frac{\partial \rho h}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \rho h \vec{u} = \vec{\nabla} \cdot (K \vec{\nabla} T) + \frac{\partial P}{\partial t} + \vec{u} \cdot \vec{\nabla} P + \vec{\tau} : \vec{\nabla} \vec{u} - \vec{\nabla} \cdot \sum_l \vec{J}_l h_l + S_h \quad (\text{II.16})$$

où,

$$S_h = (f_t(E/n) + f_{ex}(E/n)) \vec{j} \cdot \vec{E} + \frac{\varepsilon_v}{\tau_v} \quad (\text{II.17})$$

Dans ces équations T est la température du gaz, $\vec{\tau}$ est le tenseur de la viscosité, \vec{J}_l est le flux de diffusion de l'espèce « l », K est la conductivité thermique du mélange, ε_v est la densité d'énergie des états vibrationnels, τ_v est le temps de relaxation de l'énergie vibrationnelle, S_h représente le transfert d'énergie thermique de la décharge vers le gaz neutre, $\vec{j} \cdot \vec{E}$ est la densité de puissance gagnée par les espèces chargées dans le champ, $f_{ex}(E/n)$ représente la fraction de la densité de puissance totale transférée sur les niveaux d'excitation électronique

radiatifs et $f_t(E/n)$ représente celle transférée par collisions élastiques et rotationnelles. Seules les collisions élastiques entre espèces chargées et neutres conduisent à un échauffement instantané du gaz. Nous supposons dans ce travail que les espèces excitées sur des niveaux rotationnels et d'excitation électronique radiatifs relaxent également « instantanément », c'est-à-dire sur une échelle de temps courte par rapport à toutes variations significatives des grandeurs d'évolution du flux de gaz neutre. Cette hypothèse ne s'applique toutefois pas aux états excités sur des niveaux vibrationnels qui relaxent au bout d'un temps τ_v long de plusieurs dizaines de microsecondes. De ce fait, le calcul de S_h est couplé avec l'équation de conservation de la densité d'énergie des espèces vibrationnelles (II.18). Cette équation, non prise en compte par le logiciel FLUENT dans sa version de base, a été rajoutée au système des équations de la dynamique des fluides dans le but de modéliser le transfert d'énergie vibrationnel au gaz. Au bilan, nous obtenons :

$$\frac{\partial \varepsilon_v}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \varepsilon_v \vec{u} = S_v - \frac{\varepsilon_v}{\tau_v} \quad (\text{II.18})$$

où,

$$S_v = f_v(E/n) \vec{j} \cdot \vec{E} \quad (\text{II.19})$$

$f_v(E/n)$ représente la fraction de la densité de puissance totale transférée par vibration et S_v représente le terme source d'énergie vibrationnel.

Les différents termes sources intervenant dans les équations de base de Navier-Stokes ainsi que dans l'équation d'énergie vibrationnelle (II.18) sont calculés à partir du modèle de la phase de décharge présenté dans le paragraphe II.4 de ce chapitre. Leurs évolutions spatio-temporelles et leur couplage avec le modèle simplifié seront explicités dans le chapitre III. Toutes ces équations (II.6 à II.18) peuvent être simplifiées grâce à l'approximation de Boussinesq.

Nous avons vu dans le paragraphe II.5.1 que le nombre de Reynolds peut être, dans certaines conditions, supérieur à la limite du régime laminaire ce qui peut entraîner des phénomènes de turbulence. L'apparition de ce phénomène est liée à une amplification de perturbations « infinitésimales », c'est-à-dire pouvant être considérées comme ponctuelles et/ou quasi

instantanées au regard des échelles spatiales et temporelles caractéristiques de l'écoulement. Le plus souvent, la transition laminaire/turbulent se fait graduellement par l'apparition successives d'instabilités. La simulation d'un écoulement turbulent peut être réalisée à l'aide des équations de Navier-Stokes aux conditions que le maillage soit suffisamment fin pour décrire les instabilités sur les petites échelles de l'écoulement et que le domaine de calcul soit assez étendu pour capturer les mouvements macroscopiques induits (tourbillons, redistribution de l'écoulement, etc.). A ces contraintes spatiales, se rajoutent des contraintes de pas de temps d'évolution qui doivent s'adapter aux variations rapides et localisées des instabilités. Toutefois, il est possible de simuler directement les phénomènes macroscopiques moyens (c'est-à-dire à grandes échelles spatiales et temporelles vis-à-vis des perturbations) en introduisant dans les équations, des termes de fluctuation qui modélisent les effets dissipatifs des petites structures instables de l'écoulement.

Ainsi, en régime turbulent, toute grandeur physique ϕ peut s'écrire comme la somme d'une valeur moyenne $\langle \phi \rangle$ et d'une perturbation ϕ' (à valeur moyenne nulle).

$$\phi = \langle \phi \rangle + \phi'$$

où,

$$\langle \phi \rangle = \frac{1}{\Delta t} \int_t^{t+\Delta t} \phi dt$$

Dans ce cas, la moyenne est temporelle, ce qui veut dire que les échelles de temps d'étude sont grandes devant les échelles de temps caractéristiques des perturbations. En introduisant ces quantités dans les équations de la dynamique des fluides, on obtient les équations utilisées par FLUENT pour modéliser le comportement moyen d'un écoulement turbulent:

$$\frac{\partial \langle \phi \rangle}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \langle \phi \rangle \langle \vec{u} \rangle = \langle S_\phi \rangle - \vec{\nabla} \cdot \langle \phi' \vec{u}' \rangle \quad (\text{II.20})$$

où, ϕ correspond respectivement à ρ , $\rho \vec{u}$, ρc_i et ρh et S_ϕ correspond au second membre des équations (II.6), (II.7), (II.12), (II.16) et (II.18).

Les effets de dissipation sur le mouvement moyen sont pris en compte au travers du dernier terme $-\vec{\nabla} \cdot \phi' \bar{\bar{u}}'$ de l'équation (II.20). En fait, il est surtout nécessaire de pouvoir calculer le terme $\bar{\bar{u}}' \bar{\bar{u}}'$ appelé tenseur de Reynolds pour fermer le nouveau système d'équations. Pour ce faire nous allons présenter trois modèles de turbulence :

II.5.6 Modèle de turbulence k-ε standard :

Le modèle k-ε (Launder 1972) utilise une fermeture à deux équations, qui implique l'isotropie. Il permet une description de la turbulence à haut Reynolds et est le modèle le plus utilisé. Ce modèle est robuste et ses domaines d'applications sont larges. Il est basé sur l'hypothèse de Boussinesq, ce qui permet de relier le tenseur de Reynolds aux grandeurs moyennes de l'écoulement avec :

$$\rho \bar{\bar{u}}'_i \bar{\bar{u}}'_j = \rho \frac{2}{3} \chi \delta_{ij} - \mu_t \vec{\nabla} \cdot \langle \bar{\bar{u}} \rangle + \frac{2}{3} \mu_t (\vec{\nabla} \cdot \langle \bar{\bar{u}} \rangle) \delta_{ij} \quad (\text{II.21})$$

où μ_t est la viscosité turbulente, δ_{ij} le symbole de Kronecker et χ l'énergie cinétique de turbulence qui est égale à la moitié de la trace du tenseur du Reynolds :

$$\chi = \frac{\bar{\bar{u}}'_i \bar{\bar{u}}'_i}{2} \quad (\text{II.22})$$

Dans le modèle k-ε standard, la viscosité turbulente a pour expression (Ansys Fluent 12.0):

$\mu_t = C_\mu \rho \frac{\chi^2}{\varepsilon}$, avec C_μ est une constante empirique qui vaut 0.09 par défaut dans FLUENT (voir tableau II.2) et ε est la dissipation visqueuse turbulente. Les valeurs de χ et ε sont déterminées en tous points par la résolution des équations de conservation suivantes (Launder 1972) :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho \chi) + \vec{\nabla} \cdot (\rho \chi \langle \bar{\bar{u}} \rangle) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\left(\mu + \frac{\mu_t}{\text{Pr}_\chi} \right) \frac{\partial \chi}{\partial x_j} \right] + G_\chi - \rho \varepsilon + S_\chi \quad (\text{II.23})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho \varepsilon) + \vec{\nabla} \cdot (\rho \varepsilon \langle \bar{\bar{u}} \rangle) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\left(\mu + \frac{\mu_t}{\text{Pr}_\varepsilon} \right) \frac{\partial \varepsilon}{\partial x_j} \right] + C_{1\varepsilon} G_\chi \frac{\varepsilon}{\chi} - C_{2\varepsilon} \rho \frac{\varepsilon^2}{\chi} + S_\varepsilon \quad (\text{II.24})$$

Pr_χ et Pr_ε sont les nombres de Prandtl qui gouvernent la diffusion turbulente de χ et ε et S_χ et S_ε représentent les termes sources. Les constantes empiriques $C_{1\varepsilon}$ et $C_{2\varepsilon}$ sont données dans le tableau II.2 ci-dessous :

$C_{1\varepsilon}$	$C_{2\varepsilon}$	C_μ	Pr_χ	Pr_ε
1,44	1,92	0,09	1	1,3

Tableau II.2: Valeurs par défaut des constantes empiriques utilisées pour le modèle k- ε

G_χ est le taux de production de l'énergie cinétique turbulente χ : $G_\chi = \mu_t \nabla < \bar{u} > \frac{\partial < \bar{u}_i >}{\partial x_i}$

II.5.7 Modèle de turbulence RNG k- ε (ReNormalisation Group):

Ce modèle utilise aussi une relation de fermeture à deux équations qui impliquent l'isotropie. Le RNG k- ε (Yakhot 1992) possède un domaine d'application encore plus vaste. En particulier, il conduit à de meilleurs résultats pour les écoulements avec des déformations et des courbures importantes, les écoulements instationnaires et les écoulements à faible nombre de Reynolds. Dans ce modèle, les constantes sont évaluées par des calculs théoriques et non empiriquement. En particulier, les effets liés aux bas Reynolds sont pris en compte et des comportements de type laminaire peuvent également être prédits.

Les deux équations de fermeture du système d'équations utilisant le modèle RNG k- ε sont les suivantes :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \chi) + \vec{\nabla} \cdot (\rho < \bar{u}_i > \chi) = \frac{\partial}{\partial x_j} (\psi \mu_{eff} \frac{\partial \chi}{\partial x_j}) + G_\chi - \rho \varepsilon + S_\chi \quad (II.25)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \varepsilon) + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho < \bar{u}_i > \varepsilon) = \frac{\partial}{\partial x_j} (\psi \mu_t \frac{\partial \varepsilon}{\partial x_j}) + C_{1\varepsilon} \frac{\varepsilon}{\chi} G_\chi - C_{2\varepsilon} \rho \frac{\varepsilon^2}{\chi} - R + S_\varepsilon \quad (II.26)$$

où, ψ est l'inverse du nombre de Prandtl turbulent, donné par l'expression (II.25) qui permet d'inclure les variations de ce nombre avec le nombre de Reynolds :

$$\left| \frac{\psi - 1.3929}{\psi_0 - 1.3929} \right|^{0.6321} \left| \frac{\psi + 2.3929}{\psi_0 + 2.3929} \right|^{0.3679} = \frac{\mu}{\mu_{eff}} \quad (II.27)$$

où, $\mu_{eff} = \mu + \mu_t$ est la viscosité effective, R est le taux de déformation et $\psi_0 = 1$. Ce résultat issu de la théorie RNG permet d'appliquer les équations de transport dans les régions à bas Reynolds, sans avoir recours à des fonctions de paroi. Puisque μ_t et ψ varient continument avec le nombre de Reynolds turbulent, des valeurs moléculaires aux valeurs pleinement turbulentes, les équations de χ et ε incluent une atténuation naturelle dans les zones voisines des parois.

La principale amélioration par rapport au k- ε standard provient de R , qui rend l'équation du taux de dissipation moins diffusif (Yakhot 1992). Grâce à une base théorique plus solide que le modèle k- ε classique (qui conduit notamment à des valeurs typiques un peu différentes des coefficients empiriques comme le montre le tableau II.3), le modèle RNG k- ε donne de meilleurs résultats dans une grande variété de cas.

$C_{1\varepsilon}$	$C_{2\varepsilon}$	C_μ	Pr_ε
1,42	1,68	0,0845	1,39

Tableau II.3: Valeurs typiques de coefficients du modèle RNG k- ε pour des valeurs élevées du nombre de Reynolds

II.5.8 Modèle des tenseurs de Reynolds

Ce Modèle, désigné comme modèle RSM (Reynolds Stress Model), possède une fermeture à sept équations qui permet de relâcher l'hypothèse d'isotropie. RSM est un modèle plus lourd et plus général. Toutefois, il nécessite plus de données en entrée et ces données

supplémentaires ne sont pas nécessairement connues. Le modèle RSM est souvent le mieux adapté pour des écoulements tourbillonnants.

II.5.9 Coefficients de diffusion massique

Dans notre cas, le logiciel FLUENT utilise l'approximation de la loi de Fick pour calculer les coefficients de diffusion dans l'équation II.13. Dans un mélange à plusieurs constituants, le calcul des coefficients de diffusion massique D_l de chaque espèce « l » dans le mélange est déterminé par l'expression (II.28) suivante (Hines 1984) :

$$D_l = \frac{1 - X_l}{\sum_{k, k \neq l} (X_k / D_{lk})} \quad (\text{II.28})$$

X_l est la fraction molaire de l'espèce « l » dans le mélange et D_{lk} sont les coefficients de diffusion binaire de l'espèce « l » dans un gaz pur « k ». Ces coefficients sont donnés par la théorie cinétique des gaz en supposant que le potentiel d'interaction entre les deux espèces « l » et « k » dans le mélange binaire est de type Lennard-Jones. Dans ce cas, D_{lk} est donné par la relation suivante (Hirschfelder 1954):

$$D_{lk} = 0.0188 \frac{\sqrt{T^3 \left(\frac{1}{M_l} + \frac{1}{M_k} \right)}}{P d_{lk}^2 \Omega_{lk}(T_{lk}^*)} \quad (\text{II.29})$$

P est la pression totale du gaz, M_l et M_k sont les masses molaires des espèces « l » et « k », d_{lk} est le diamètre de collision et $\Omega_{lk}(T_{lk}^*)$ l'intégrale réduite de collision fonction de la température réduite $T_{lk}^* = k_B T / \beta_{lk}$. β_{lk} est l'énergie du puit du potentiel d'interaction.

Les valeurs de β_{lk} et d_{lk} sont calculées par des lois empiriques en fonction des paramètres β_l , β_k et d_l , d_k du potentiel d'interaction des espèces dans leur gaz pur respectif. Ces lois empiriques donnent (Hirschfelder 1954):

$$\beta_{lk} = (\beta_l \beta_k)^{1/2} \quad (\text{II.30})$$

$$d_{lk} = \frac{1}{2}(d_l + d_k) \quad (\text{II.31})$$

Le coefficient de diffusion thermique D_l^T , qui apparaît dans l'expression (II.13), permet aux espèces les plus lourdes de diffuser lentement et aux espèces dense de diffuser rapidement vers les zones les plus chaudes. D'après la théorie cinétique des gaz, son expression est donné par l'équation (II.32) (Kuo 1986) (Ansys Fluent 12.0) :

$$D_l^T = -2.59 \times 10^{-7} T^{0.659} \left[\frac{M_l^{0.511} X_l}{\sum_{l=1}^N M_l^{0.511} X_l} - c_l \right] \left[\frac{\sum_{l=1}^N M_l^{0.511} X_l}{\sum_{l=1}^N M_l^{0.489} X_l} \right] \quad (\text{II.32})$$

On peut indiquer que dans le cas d'un écoulement turbulent la relation (II.13) s'écrit sous la nouvelle forme suivante :

$$\vec{J}_l = -(D_l + D_t) \vec{\nabla} \rho c_l - D_l^T \frac{1}{T} \vec{\nabla} T \quad (\text{II.13}')$$

avec D_t le coefficient de diffusion massique dû à la turbulence.

II.5.10 Relations de fermeture

Dans ce paragraphe, nous allons rappeler les relations de fermeture utilisées sur le tenseur de Reynolds basée sur la viscosité et les flux diffusif et thermique.

- Tenseur de viscosité (diffusion de la quantité de mouvement) :

$$\tau_{ii} = -\mu(T) \left[2 \frac{\partial u_i}{\partial x_i} - \frac{2}{3} \nabla \cdot \vec{u} \right] \quad (\text{II.8})$$

$$\tau_{ij} = \tau_{ji} = -\mu(T) \left[\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right] \quad (\text{II.9})$$

- La viscosité dans un mélange multi-constituant (Ansys Fluent 12.0) :

$$\mu = \sum_l \frac{X_l \mu_l}{\sum_k X_k \Pi_{lk}} \quad (\text{II.33})$$

où,

$$\Pi_{lk} = \frac{\left[1 + \left(\frac{\mu_l}{\mu_k} \right)^{1/2} \left(\frac{M_k}{M_l} \right)^{1/4} \right]^2}{\left[8 \left(1 + \frac{M_l}{M_k} \right) \right]^{1/2}} \quad (\text{II.34})$$

- Flux de diffusion massique :

$$\vec{J}_l = -D_l \vec{\nabla} \rho_l - D_l^T \frac{1}{T} \vec{\nabla} T \quad (\text{II.13})$$

- Flux de diffusion thermique (loi de Fourier):

$$\vec{q} = -K \vec{\nabla} T \quad (\text{II.35})$$

Enfin, nous allons fermer le système des équations (II.7), (II.12), (II.16) et (II.18) par l'équation classique du gaz parfait par laquelle nous allons déterminer la densité totale du gaz.

$$P = nk_B T \quad (\text{II.36})$$

où,

$$n = \sum_{l=1}^{l_p} n_l \quad (\text{II.37})$$

k_B la constante de Boltzmann et n_l est la densité de l'espèce « l ».

II.6 Phénomènes de couplages

Nous avons déjà isolé dans les paragraphes II.4 et II.5 les très forts couplages existant au sein du système d'équations du modèle électro-dynamique ainsi qu'entre les équations du modèle de cinétique chimique.

Le couplage est encore plus complexe si on regroupe l'ensemble des équations (II.1 à II.18). Par exemple, sous l'effet des transferts d'énergie thermique et de quantité de mouvement des espèces chargées vers les espèces neutres, le gaz peut se mettre en mouvement. Ceci induit une variation de la densité n du gaz qui modifie en conséquence le champ réduit E/n et donc toutes les propriétés de transport et de réaction des espèces chargées entre elles et avec les neutres. Ces variations modifient la dynamique de la décharge et donc l'ensemble des processus de collisions espèces chargées-neutres. Dans notre travail, nous ne prendrons pas en compte les effets de la variation de la densité du gaz sur le développement des décharges.

Malgré cette hypothèse, la résolution d'un tel modèle aussi fortement couplé dans une configuration multidimensionnelle demande l'emploi de méthodes numériques performantes et de logiciels adaptés. Avant de décrire le logiciel choisi, le prochain paragraphe donne un état de l'art de la résolution du modèle mathématique présenté ci-avant. Cet état de l'art nous permettra de situer notre travail et d'en montrer toute l'originalité.

III. Etat de l'art de la simulation des réacteurs corona

En plus des fortes contraintes de couplage qui sont intrinsèques aux équations du modèle, se rajoutent des difficultés spécifiques de simulation telles que :

- Les différences d'échelles spatiales et temporelles entre une dynamique de décharge de quelques centaines de nanosecondes et localisée dans des filaments très fins (d'un diamètre de quelques centaines de micromètres) et une cinétique réactionnelle pouvant s'étendre jusqu'à la seconde dans des volumes de réacteur de plusieurs centaines de centimètres cube.
- La résolution d'un problème très fortement instationnaire alternant des phases de décharge et de post-décharge avec une fréquence de répétition d'une dizaine de kilohertz.
- Le suivi de très forts gradients aussi bien durant les phases de propagation des ondes d'ionisation que lors des phases de post-décharge avec la génération des chocs thermiques et des ondes de pression associées.
- La détermination validée des profils et des ordres de grandeur des différents termes sources de production d'espèces chimiquement actives, de transfert de quantité de mouvement et d'énergie issus des phases de décharge.

- Le choix judicieux du nombre de réactions et d'espèces à prendre en considération pour modéliser au plus près la réalité des processus tout en conservant des temps de calcul raisonnables, la cinétique réactionnelle du mélange (problématique de réduction chimique).

On conçoit alors aisément que les premières études touchant à la simulation des réacteurs corona se soient basées sur un nombre important d'hypothèses simplificatrices permettant de réduire ces difficultés.

Les simulations les plus « simples » consistent à résoudre un modèle 0D qui se résume aux équations II.12 en configuration homogène (Kossyi 1992) (Orlandini 2000) (Dorai 2001) (Eichwald 1997). Ce type de modèle permet de prendre en compte un nombre important d'espèces et de réactions chimiques aussi bien durant les phases de décharge que de post-décharge. Cependant, il est nécessaire d'initialiser la densité de toutes les espèces chimiques à prendre en considération ainsi que l'énergie moyenne déposée par la décharge. Le travail le plus connu est certainement celui de Kossyi et al. (Kossyi 1992) qui a modélisé la cinétique de transformation des polluants dans l'air synthétique (N_2/O_2) à l'aide d'une quarantaine d'espèces (chargées, neutres et excités) réagissant selon 450 réactions chimiques. D'autres travaux ont introduit une étude paramétrique en fonction de la température du gaz et de la concentration initiale de polluants. Le travail d'Orlandini et Riedel en est un exemple (Orlandini 2000). Le traitement des NO est étudié avec 50 espèces et 443 réactions pour deux températures homogènes de gaz (423 et 473K) et dans un mélange d'air humide ($N_2/O_2/H_2O$) avec des concentrations initiales de NO et/ou de C_2H_4 . On peut signaler que dans les travaux d'Orlandini et Riedel, la concentration des radicaux est estimée à l'aide d'un modèle 2D de la phase de décharge. Ces radicaux sont injectés 100 fois toutes les 0,1ms pour simuler l'effet d'un train de décharges sur la cinétique du mélange. Dans le cas des travaux du groupe (Eichwald 1997), les variations de la température et de la densité du gaz sont estimés par le couplage 2D des phases de décharge et de post-décharge. Un modèle 0D est ensuite utilisé pour suivre localement 38 espèces chimiques réagissant selon 287 réactions dans un mélange d'air humide ($N_2/O_2/CO_2/H_2O$).

Des simulations plus complexes en 1,5D ou 2D existent également durant la phase de décharge pour estimer la production des espèces actives dans le mélange. Les modèles correspondants couplent les équations II.1 et II.5 avec les équations II.12. On peut citer par

exemple les travaux d'Eichwald et al. (Eichwald 2002) où la cinétique de la décharge dans l'air est modélisée en 1,5D avec 24 espèces (chargées et neutre) réagissant selon 88 réactions. Un travail 2D a été publié la même année (Tochikubo 2002) qui simule la propagation d'un streamer dans l'air sec entre une pointe et un plan. La cinétique prend en compte 25 espèces réagissant selon une centaine de réactions et jusqu'à une durée de 500ns. On peut également se référer au travail de Panousis et al. (Panousis 2006) qui, bien que réalisé à plus faible pression (4 torr), couple un modèle 1,5D de la décharge avec la cinétique des états vibrationnels de l'azote moléculaire. Cependant, ces différentes simulations ne sont pas en mesure de valider les profils et les densités des radicaux et des espèces excitées formées durant la phase de décharge. Un article plus récent du groupe (Eichwald 2008) lève en partie cette difficulté puisque les résultats de la phase de décharge, couplée à la production des radicaux dans l'air sec ont été confrontés avec des mesures expérimentales de courant et d'imagerie streak. La bonne concordance des résultats expérimentaux et de simulation a permis de valider les ordres de grandeurs et les profils des espèces excitées formées durant la propagation des primary et secondary streamers. Ce travail a notamment montré l'importance du secondary streamer dans la formation du radical O et la dissipation de l'énergie électronique.

Les simulations de la phase de post-décharge couplant les équations II.6, II.7, II.12, II.16 et II.18 n'existent qu'en 1D avec plus ou moins d'hypothèses simplificatrices (voir par exemple, (Gentile 1996) (Marode 1999) (Eichwald 2002) (Dorai 2003). Ces simulations se focalisent toutes sur l'évolution des espèces chimiques dans une direction radiale, c'est-à-dire perpendiculaire à la direction de propagation des décharges. Là aussi, une des difficultés réside dans l'estimation de l'amplitude et des profils des termes sources qui modélisent, dans les équations de Navier-Stokes, les effets de la décharge sur le gaz porteur. Cependant, ce type de simulation permet de montrer la limitation des modèles 0D et de mettre en évidence les effets locaux de concentration sur la transformation des polluants.

Enfin, plusieurs auteurs ont couplé en configuration 2D et dans le cas de l'étude des décharges couronne, les équations (II.1 à II.5) de la décharge avec les équations II.6, II.7, II.16 et II.18 du gaz neutre pour étudier la dynamique induite (Loiseau 2002) (Eichwald 1997) (Kacem 2010). Dans ce cas, la cinétique de post-décharge (modélisée par les équations II.12) n'est pas prise en compte. On peut noter toutefois que dans l'article (Eichwald 1997), les

profils de variation de température et de concentrations servent à une modélisation locale et 0D de la cinétique chimique. Les travaux de Loiseau et al. (Loiseau 2002) ont permis de modéliser le vent ionique induit par le passage d'une succession de streamers entre une pointe et un plan tandis que les travaux du groupe (Eichwald 1997) (Kacem 2010) ont permis de simuler les chocs thermiques et les ondes de pression générées dans une configuration de décharge couronne fil-cylindre et pointe-plan.

Cet état de l'art montre qu'il n'existe pas de simulation couplant l'ensemble des équations du modèle mathématique décrit dans le paragraphe II de ce chapitre. Les couplages les plus forts ont été réalisés en 1D uniquement et sur la base d'hypothèses restrictives concernant le modèle de la décharge et l'injection des termes sources.

Toutefois, ces travaux préliminaires ont permis d'acquérir toute l'expérience nécessaire pour aboutir à une simulation complète instationnaire en 2D et 3D d'un mélange réactif en écoulement et activé par des successions de décharges couronne. Cela démontre toute l'originalité de ce travail de thèse et l'avancée considérable au regard des travaux antérieurs.

IV. Le logiciel FLUENT : un outil de résolution du modèle

La résolution du modèle fluide permettant le couplage entre l'écoulement de gaz et les décharges électriques a été réalisée à l'aide d'un logiciel commercial de CFD (Computational Fluid Dynamics). La méthode employée nécessite la discrétisation du domaine de calcul en mailles (volumes) élémentaires pour former un maillage complet de la géométrie, puis l'application d'un algorithme numérique qui va permettre la résolution numérique du système d'équations fluides afin d'obtenir une convergence rapide vers une solution validée. Cette solution correspond aux valeurs prises par les différentes variables (inconnues du système d'équations) au centre de chaque maille élémentaire. De nombreux codes commerciaux de CFD sont disponibles (FLUENT, CFX, PHOENICS, STAR-CD, COMSOL...). Dans notre cas, nous avons choisi le code commercial FLUENT qui a été développé spécifiquement pour la simulation de tous types d'écoulements réactifs (compressible, incompressible, laminaire ou encore turbulent) et dont le groupe possède la maîtrise à cause de son utilisation pour la modélisation de post décharges en flux en régime stationnaire et sous pression réduite. En fait, dans sa description la plus complète, le logiciel FLUENT permet de résoudre les équations de

Navier-Stokes impliquant les phénomènes physiques complexes comme la turbulence, le transfert thermique, les réactions chimiques et les écoulements multiphasiques.

Les différents algorithmes employés par FLUENT pour la résolution des équations dans chaque volume élémentaire sont explicités dans le schéma de la figure II.1 ci dessous :

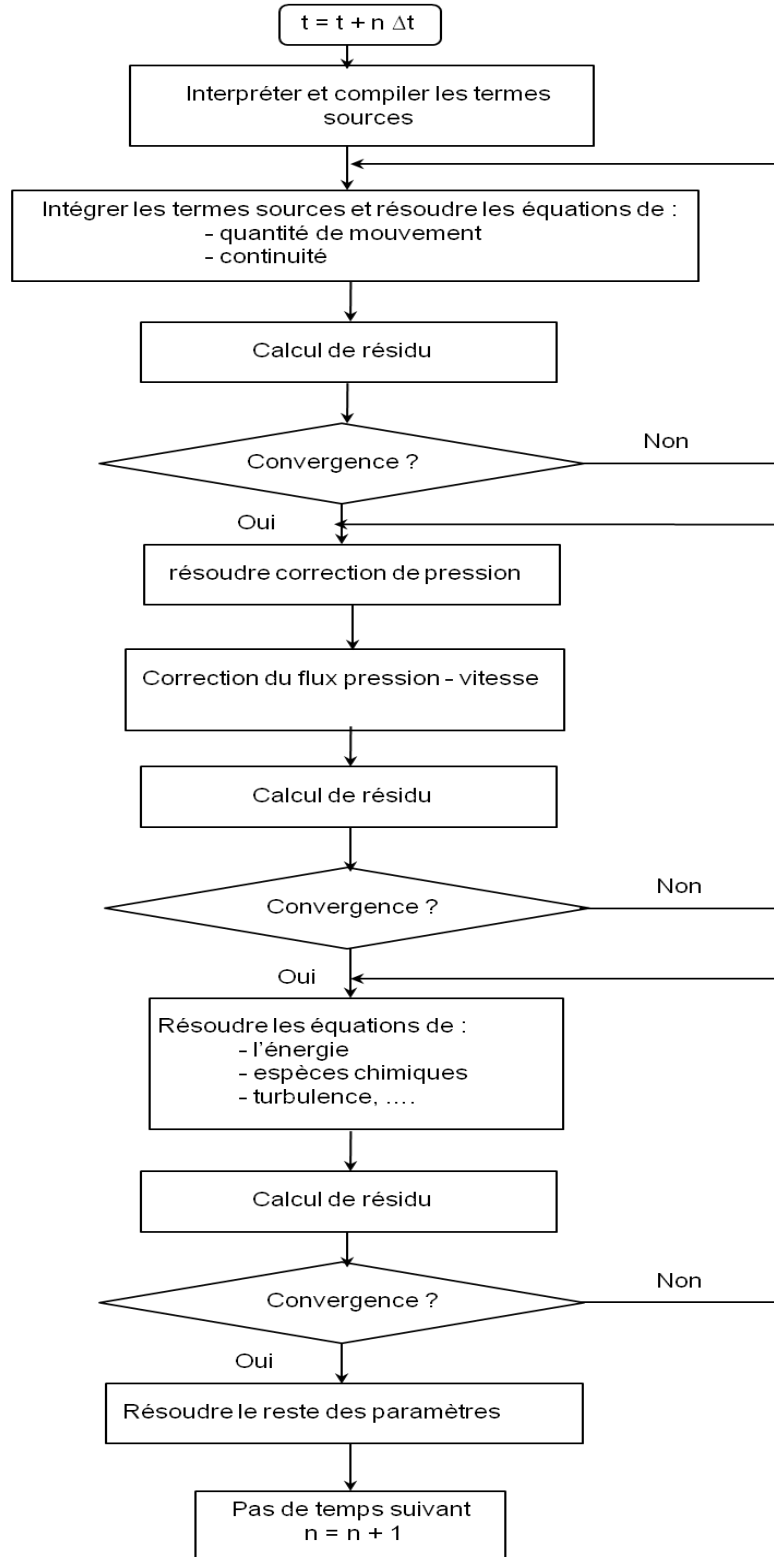


Figure II.1: Les étapes de résolution FLUENT d'un écoulement instationnaire et incompressible.

IV.1 Choix du maillage

Définir le domaine de calcul est une des premières étapes de la simulation. Il s'agit de choisir le nombre de dimensions (de 1 à 3 dimensions) et la forme géométrique de la zone à modéliser. Une fois cette étape franchie, il faut définir un maillage du domaine, c'est-à-dire découper le domaine en mailles élémentaires. Le choix de la finesse du maillage est un problème délicat et plus particulièrement dans notre cas à cause des échelles spatiales très différentes entre le volume d'un réacteur corona et le volume traversé par les décharges filamenteuses. Il convient de faire un maillage suffisamment fin pour que les résultats aient une bonne précision et reproduisent l'ensemble des phénomènes sans toutefois conduire à des temps de calcul rédhibitoires.

En fonction de la complexité de la forme géométrique du domaine, nous pouvons choisir dans FLUENT entre un maillage structuré (Figure II.2), non structuré (Figure II.3) ou hybride. Un maillage structuré est un maillage qui peut être généré en reproduisant plusieurs fois une maille élémentaire.

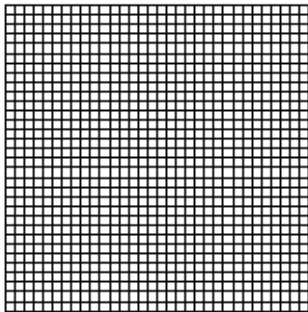


Figure II.2 : Maillage structuré

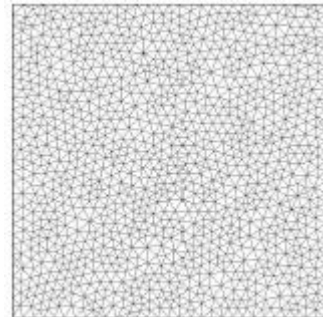


Figure II.3 : Maillage non structuré

Il est généralement composé de mailles quadrilatérales en deux dimensions (2D) et hexaédriques en trois dimensions (3D). Dans ce type de maillage, tout nœud peut être repéré par ses coordonnées (i, j, k) . Le maillage structuré (Eymard 1997) tire profit de la numérotation des mailles. Ce type de maillage présente les avantages suivants :

- Il présente un nombre inférieur de mailles par rapport à un maillage non structuré équivalent ;

- Il réduit les risques d'erreurs numériques car les composantes du champ de vitesse de l'écoulement sont alignées avec les frontières du maillage ;

Son inconvénient principal réside dans la difficulté à reproduire les géométries complexes.

Un maillage non structuré (Eymard 1997) (Figure II.2) est composé de mailles quadrilatérales ou triangulaires en 2D et hexaédriques ou tétraédriques en 3D. Ces mailles sont assemblées de manière quelconque. La topologie est donc complètement arbitraire mais s'adapte au mieux à la géométrie du domaine de calcul. Les avantages de ce type de maillage sont :

- Leur capacité à s'adapter à une géométrie complexe et de bien gérer la définition du maillage au voisinage des parois ;
- Les algorithmes de génération de ce type de maillage qui sont très automatisés ;

Leurs inconvénients concernent :

- Le nombre important de mailles comparativement au maillage structuré ;
- La génération d'erreurs numériques (de diffusion) qui peuvent être plus importantes par rapport au maillage structuré ;
- La difficulté de contrôler la densité des mailles dans une zone définie et d'y résoudre les équations de conservation ;

Un maillage hybride contient un mélange des deux types cités plus haut. Ce type de maillage est une combinaison pouvant s'appuyer sur les avantages des maillages structurés et non structurés.

Compte tenu de la spécificité de notre étude, pour laquelle il était nécessaire d'implémenter des termes sources dans une zone spécifique de la géométrie (zone de décharge), nous avons opté pour l'utilisation d'un maillage structuré.

IV.2 Méthodes de discrétisation

Le résultat de la discrétisation d'une équation aux dérivées partielles est un ensemble fini de valeurs qui permet de reconstruire la forme des solutions. La discrétisation correspond à la transformation des équations aux dérivées partielles en un système d'équations algébriques

établies sur un nombre fini de points du domaine d'étude (les nœuds du maillage). L'équation discrétisée dépend du maillage et de la méthode de discrétisation. Toute bonne méthode de discrétisation doit conduire à une solution convergente du système d'équations aux dérivées partielles quand on augmente le nombre de points du maillage.

Il existe trois grandes classes de schémas numériques permettant la discrétisation des équations aux dérivées partielles: les différences finies, les éléments finis et les volumes finis (Eymard 1997).

- La méthode des différences finies consiste à remplacer les dérivées qui apparaissent dans le problème continu par des différences finies qui les approximent en un nombre fini de points discrets à l'aide de développements de Taylor. Le principal avantage de cette méthode réside dans sa grande simplicité d'écriture. Cependant, il existe des cas pour lesquels les opérateurs différences finies ne donnent pas les résultats physiques auxquels on pourrait s'attendre. Par exemple, l'existence de discontinuités (chocs, changement de milieu) ou de forts gradients peut engendrer de fortes erreurs dans les formules de différences finies et peuvent notamment donner lieu à l'apparition d'oscillations. D'autre part, ces méthodes ne tiennent pas compte a priori de l'existence de lois de conservation (Eymard 1997). Ainsi, la masse ou l'énergie totale ne sont pas conservées dans ces schémas en raison des erreurs numériques d'intégration.
- La méthode des éléments finis consiste à résoudre de manière discrète des équations aux dérivées partielles dont on cherche une solution approchée et fiable. Elle s'appuie sur une formulation variationnelle de l'équation aux dérivées partielles. Les principaux avantages de cette méthode sont liés au traitement possible de géométries complexes, à la détermination plus naturelle des conditions aux limites et à la possibilité de démonstrations mathématiques de convergence. Cependant, la mise en œuvre de cette méthode est complexe et le temps de calcul est important. De plus cette approche est peu adaptée à la résolution des termes non linéaires.
- La méthode des volumes finis a été développée en 1980 par Patankar (Patankar 1980). Cette méthode intègre, sur des volumes élémentaires de forme simple définis par le

maillage, les équations écrites sous forme de loi de conservation (Eymard 1997). Elle fournit ainsi de manière naturelle des approximations discrètes conservatives et est donc particulièrement bien adaptée aux équations de la mécanique des fluides (Navier-Stokes). Sa mise en œuvre est simple lorsque les volumes élémentaires sont des rectangles (ou des parallélépipèdes rectangles en 3 dimensions). Elle permet aussi d'utiliser des volumes élémentaires de forme quelconque, donc de traiter des géométries complexes. Les valeurs des variables sont considérées uniformes dans chaque volume élémentaire. Ensuite, des interpolations sont réalisées pour déterminer les flux aux interfaces à partir de la valeur des variables dans les volumes élémentaires. Cette méthode conserve la cohérence physique des équations de conservation et explique qu'elle soit utilisée dans la plupart des codes généralistes de CFD (Computational Fluid Dynamics), y compris FLUENT.

Après discrétisation d'une équation de conservation d'une grandeur ϕ (pouvant être la densité de masse, de quantité de mouvement ou d'énergie) par la méthode des volumes finis, nous obtenons pour chaque volume de contrôle du maillage dont le centre est le point « X » une équation générique de la forme :

$$b_X \phi_X = \sum_{nb} b_{nb} \phi_{nb} + S \quad (\text{II.38})$$

ϕ_X : valeur de ϕ au point X.

ϕ_{nb} : valeur de ϕ au point central des cellules adjacentes

b_X et b_{nb} : coefficients dépendant de l'équation aux dérivées partielles.

S : terme source générique.

IV.3 Méthode numérique de FLUENT

IV.3.1 Résolution du couplage pression-vitesse dans le cas d'un écoulement incompressible

L'une des contraintes majeures que l'on rencontre au moment de la résolution numérique des problèmes d'écoulements des fluides incompressibles est la satisfaction de la conservation de la densité de masse. Pour satisfaire l'équation de continuité, le champ de vitesse doit être à divergence nulle. Plusieurs méthodes sont utilisées pour aborder cette contrainte. La méthode la plus utilisée en géométrie cartésienne regroupe les méthodes itératives de type « prédiction-correction ». Elles conduisent à une équation de correction de pression dans le but de corriger les vitesses en utilisant des algorithmes SIMPLE (Semi Implicit Method for Pressure Linked Equations), SIMPLEC (Semi Implicit Method for Pressure Linked Equations Corrected) ou PISO (Pressure Implicit with Splitting of Operators).

Ces différents algorithmes ont été testés dans un cas simple correspondant à un cycle décharge / post décharge (0.1 ms). Les résultats obtenus sont identiques avec une durée de calcul légèrement inférieure pour SIMPLEC, qui est donc l'algorithme utilisé dans la suite de ce travail.

IV.3.2 Conditions aux limites et conditions initiales

Les équations que nous venons de décrire permettent d'accéder aux grandeurs recherchées dans le volume. Cependant, au même titre que pour résoudre une équation différentielle ordinaire du 1^{er} ordre, il faut partir de conditions initiales et définir sur toutes les limites du domaine de simulation des conditions spécifiques qui vont permettre de définir de manière absolue les grandeurs intégrées.

Les conditions aux limites sont imposées aux frontières du domaine de calcul. On distingue trois grands types de conditions : la condition de Neumann exprimée sous la forme ($\vec{\nabla}\phi = \text{constante}$), la condition de Dirichlet qui considère que la valeur de ϕ est constante aux frontières ($\phi = \text{constante}$) ou encore la condition de Robin qui est une combinaison de ces deux conditions (Neumann et Dirichlet).

Dans notre cas, nous allons imposer les conditions de Dirichlet.

IV.3.3 Convergence

La convergence est déterminée à partir de la valeur des résidus $R^\phi = b_x \phi_x - \sum_{nb} b_{nb} \phi_{nb} - S$ (donner l'expression du résidu). Ceux-ci sont déterminés à chaque itération (cf. Fig II.1) pour chaque variable (densité, vitesse, énergie, densité des espèces chimiques) dans chaque maille élémentaire du maillage. Les valeurs des résidus nous renseignent sur le degré de convergence de l'équation associée à chaque variable. Il n'existe pas de critère absolu pour évaluer la convergence mais la valeur des résidus, leur évolution ainsi que la valeur de l'inconnue sont des éléments importants pour faire cette évaluation.

Le critère de convergence, basé sur la somme des résidus normalisés sur l'ensemble des points du domaine de calcul, s'écrit alors :

$$\left| \frac{\sum_x \left(b_x \phi_x - \sum_{nb} b_{nb} \phi_{nb} - S \right)}{\sum_x b_x \phi_x} \right| < \varepsilon_\phi \quad (\text{II.39})$$

Nous avons utilisé, le long de ce travail, les critères de convergence ε_ϕ recommandés dans le manuel FLUENT qui sont de 10^{-6} pour l'enthalpie et de 10^{-3} pour les autres grandeurs.

V. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons décrit le modèle mathématique qui permet de suivre la propagation du streamer durant la phase de décharge. Développé par ailleurs dans le groupe, il est basé sur une simulation 2D (en configuration cylindrique) des décharges filamenteuses de type streamers qui prend en compte le couplage des équations de transport et de Poisson. Ensuite nous avons synthétisé l'état de l'art concernant la simulation des phases de décharge et de post décharge des réacteurs corona de dépollution des gaz. Ceci nous a permis de mettre en évidence l'originalité de ce travail. Enfin, nous avons présenté le solveur FLUENT qui sera adapté pour prendre en considération les termes sources des décharges et l'équation de conservation de l'énergie vibrationnelle, de façon à simuler en régime fortement

instationnaire les effets des décharges couronne sur la cinétique d'un mélange gazeux en écoulement.

Le chapitre suivant est consacré à l'explicitation du couplage entre les décharges couronne et un flux d'air synthétique dans une configuration 2D mono-pointe plan en régime d'écoulement instationnaire. Les résultats obtenus pour cette géométrie simplifiée vont nous permettre de valider les hypothèses de simulation et de se familiariser avec le comportement cinétique, énergétique et hydrodynamique d'un réacteur de dépollution mono-pointe plan activé par une succession de décharges.

Chapitre III : Validation du modèle dans une configuration mono-pointe plan

I. Introduction	87
II. Conditions de simulation	88
II.1 Conditions expérimentales	88
II.2 Réactivité du mélange et données de base	89
II.3 Géométrie du domaine d'étude et conditions aux limites	92
II.4 Traitement du couplage décharge – dynamique du gaz	94
III. Résultats et analyse	98
III.1 Phase de décharge	98
III.1.1 Validation des termes sources d'injection	98
III.1.2 Remarques sur l'optimisation des durées de simulation	101
III.2 Phase de post-décharge en régime statique	102
III.2.1 Etude des effets thermiques	103
III.2.2 Etude de la réactivité du mélange	105
III.3 Phase de post-décharge en présence d'un écoulement	110
III.3.1 Ecoulement latéral traversé par une unique décharge	110
III.3.2 Effets des injections périodiques et de la direction de l'écoulement	112
III.3.3 Influence du régime d'écoulement	117
IV. Conclusion	119

Chapitre III. : Validation du modèle dans une configuration mono-pointe plan

I. Introduction

Ce chapitre a pour but de tester les capacités du logiciel FLUENT à pouvoir répondre aux contraintes de nos conditions d'étude, et d'appréhender les comportements spatiotemporels de l'énergie et des espèces chimiques dans un réacteur activé par des décharges couronnes. Ainsi et dans un premier temps, nous avons simulé une zone spatiale réduite correspondant au proche voisinage d'une décharge couronne DC mono-filamentaire en configuration mono pointe-plan. Les paramètres variables dans cette première étude sont la vitesse et l'orientation de l'écoulement, le régime d'écoulement (laminaire ou turbulent) ainsi que le nombre de décharges successives traversant le domaine. Le logiciel FLUENT (Ansys Fluent 12.0) a été adapté et utilisé dans sa version instationnaire. Ce chapitre va nous permettre :

- De tester les capacités du code à reproduire les profils des densités et de la température du gaz durant la phase de décharge en implémentant des termes sources issus du modèle complet de décharge développé dans le groupe PRHE. Ce test portera sur la comparaison des résultats obtenus au bout de 150 ns, c'est-à-dire après la première phase de décharge.
- De suivre en détail l'évolution spatiotemporelle de l'énergie et de toutes les espèces chimiques prises en compte ainsi que la relaxation du système dans la phase de post-décharge en fonction de la vitesse, de l'orientation de l'écoulement et du nombre de décharges.

Le premier paragraphe de ce chapitre présente les conditions de simulation issues d'un réacteur expérimental de dépollution des gaz, la géométrie et les dimensions du domaine simulé ainsi que les hypothèses du couplage entre les décharges couronnes avec la dynamique du gaz réactif. Dans le second paragraphe, nous allons présenter les résultats issus d'une simulation réalisée en configuration mono pointe-plan et sans écoulement, puis nous analyserons les effets d'un écoulement et du passage périodique des décharges.

II. Conditions de simulation

Les différentes conditions de simulations vont nous permettre de cerner la capacité du code FLUENT à reproduire, en régime instationnaire, les évolutions spatio-temporelles de la quantité de mouvement, des radicaux et de l'énergie injectés puis de mettre en évidence l'influence du régime d'écoulement pour choisir celui qui sera le plus adapté à notre cas.

II.1 Conditions expérimentales

Les conditions expérimentales sont celles décrites dans l'article d'Eichwald et al. (Eichwald 2008). La décharge est de type mono pointe-plan et un potentiel continu de 7,2 kV est appliqué sur la pointe qui est distante de 7mm du plan. Le gaz porteur est de l'air synthétique (80% N₂ et 20% O₂) dans les conditions ambiantes de température et de pression. La pointe est une tige de 1mm de diamètre qui se termine en cône, au bout duquel se trouve une sphère d'un rayon de 20µm. Les dimensions de la pointe permettent de considérer que son influence est négligeable sur l'écoulement. Dans ces conditions, la phase de décharge dure environ 150ns et englobe la propagation d'un primary et d'un secondary streamer. Le canal ionisé formé durant la phase de décharge est mono-filamentaire avec un diamètre représentatif de l'ordre de 50 µm. Les observations expérimentales montrent également que la fréquence moyenne de répétition des phases de décharge est voisine de 10 kHz, ce qui signifie que les phases de post-décharge durent environ 0,1 ms.

La simulation doit donc alterner des phases de décharges d'une durée de 150ns durant lesquelles sont injectés dans un canal d'un diamètre de 50µm, des termes sources de quantité de mouvement, de radicaux, de métastables et d'énergie et des phases de post-décharge d'une durée de 0,1 ms. Les phases de post-décharge permettront de suivre l'échauffement de

l'écoulement, la diffusion et la réactivité des espèces chimiques à l'extérieur des zones d'injection.

II.2 Réactivité du mélange et données de base

La réactivité du mélange est modélisée par la prise en compte de 10 espèces chimiques (atomes : N et O, molécules sur des états excités métastables : $N_2 (A^3\Sigma_u^+)$, $N_2 (a^1\Sigma_u^-)$ et $O_2 (a^1\Delta_g)$ et molécules à l'état fondamental : O_3 , NO_2 , NO , O_2 et N_2) réagissant selon 23 réactions sélectionnées et présentées dans le tableau de l'annexe A. Les atomes et les états métastables moléculaires sont injectés durant chaque phase de décharge dans le canal ionisé mono-filamentaire situé entre la pointe et le plan. L'intégration des termes sources durant la phase de décharge est détaillée dans le paragraphe II.4.

Le modèle intègre donc 10 équations de conservation des espèces chimiques (équations (II.12)). A titre d'exemple, si nous prenons l'équation de conservation de l'espèce atomique N, son terme source S_N prend en compte toutes les réactions intervenant dans son évolution à savoir les 11 réactions (1), (2), (3), (9), (10), (11), (15), (17), (19) et (23) du tableau de l'annexe A. A ces 11 réactions se rajoute, uniquement à chaque phase de décharge et localement dans le volume du canal ionisé, un terme source de création de l'atome N par collision électron- N_2 . Ce terme source est estimé en fonction d'un code complet de simulation des streamers (voir paragraphe II.4)

Dans FLUENT, le calcul des coefficients de diffusion binaire D_{lk} qui entrent dans le calcul des coefficients de diffusion D_l de chaque espèce « l » dans le mélange (voir équation (II.13)) s'effectue à l'aide des paramètres du potentiel d'interaction de Lennard-Jones. Si l'on note β_l l'énergie du puits du potentiel et d_l le diamètre de collision pour des interactions entre espèces « l » dans un gaz pur, alors le puits de potentiel β_{lk} et le diamètre d_{lk} de la collision entre 2 espèces « l » et « k » dans un mélange binaire s'expriment à l'aide de formules empiriques fonction des paramètres dans un gaz pur (voir équations II.30 et II.31). Les valeurs de β_l et d_l utilisées dans ce travail sont données dans le tableau III.1 ci-dessous :

Espèces	d_l (Å)	β_l / k_B (°K)	Références
N ₂	3,681	91,5	(Hirschfelder 1954)
O ₂	3,433	113,0	(Hirschfelder 1954)
NO	3,470	119,0	(Hirschfelder 1954)
N	3,298	71,4	(Svehla 1962)
O	3,050	106,7	(Svehla 1962)
O ₃	3,875	208,4	(Massman 1998)
NO ₂	3,765	210,0	(Massman 1998)
N ₂ (a ¹ Σ _u ⁻)	3,681	91,5	(Atkinson 1989)
N ₂ (A ³ Σ _u ⁺)	3,681	91,5	(Atkinson 1989)
O ₂ (a ¹ Δg)	3,433	113,0	(Atkinson 1989)

Tableau III.1 : Valeurs des paramètres du potentiel de Lennard-Jones utilisées pour calculer les coefficients de diffusion binaire D_{lk} .

Les paramètres du potentiel de Lennard-Jones pour les états métastables sont supposés égaux à ceux des espèces correspondantes à l'état fondamental (voir tableau III.1). Il existe dans la littérature de nombreuses formules empiriques qui permettent d'estimer les paramètres β_l et d_l d'un gaz pur en fonction de ses caractéristiques thermodynamiques (comme la température ou le volume d'ébullition, la température critique, etc.). Plusieurs techniques utilisent également les coefficients de Viriel (extension de la loi des gaz parfaits), les coefficients de diffusion ou les coefficients de viscosité dynamique pour remonter aux paramètres du potentiel. Reid et al. (Reid 1987) ont montré que plusieurs couples de valeur (β_l , d_l) conduisent à des valeurs quasi identiques des coefficients macroscopiques de transport tels que le coefficient de diffusion ou la viscosité dynamique d'un gaz. Ceci n'est vrai qu'au voisinage d'une

température donnée. Dans notre cas, nous avons choisi des couples de valeurs estimées pour des températures proches de 300K.

Les caractéristiques thermiques de l'air (conductivité thermique et capacité calorifique) sont des moyennes pondérées des molécules majoritaires qui composent le gaz (N_2 et O_2). Ces caractéristiques thermiques sont calculées à l'aide des relations suivantes :

- La relation (III.1) dite de Plooster (Plooster 1971) détermine la variation de la conductivité thermique avec la température et la relation (III.2) (Guntoro 2001) indique celle de la capacité calorifique à pression constante :

$$K = \sum_l \frac{X_l K_l}{\sum_l X_l \gamma_{lk}} \quad (III.1)$$

$$K_l = K_l(T) = 2,6405 \cdot 10^{-4} T - 5,6216 \cdot 10^{-2}$$

$$c_p(T) = 1059,23621 - 0,43698 T + 0,00101 T^2 - 5,08677 \cdot 10^{-7} T^3 \quad (III.2)$$

- La viscosité dynamique μ est calculée en utilisant la loi des gaz parfaits :

$$\mu = \sum_l \frac{X_l \mu_l}{\sum_l X_l \gamma_{lk}} \quad (III.3)$$

où,

$$\gamma_{lk} = \frac{\left[1 + \left(\frac{\mu_l}{\mu_k} \right)^{1/2} \left(\frac{M_k}{M_l} \right)^{1/4} \right]^{1/4}}{\left[8 \left(1 + \frac{M_l}{M_k} \right) \right]^{1/2}} \quad (III.4)$$

X_l représente la fraction molaire de l'espèce « l », μ_l , μ_k , M_l et M_k sont respectivement la viscosité et la masse molaire des espèces « l » et « k ».

II.3 Géométrie du domaine d'étude et conditions aux limites

Dans ce chapitre, nous utilisons un domaine d'étude 2D cartésien de 1cm de côté sur 1cm de haut (voir Figure III.1). Une pointe d'un rayon de courbure de 20 μm est placée au centre du domaine à une distance de 7 mm du plan. L'écoulement d'air est soit transversal (selon Ox) soit vertical (selon Oz). Dans le cas d'un flux transversal (Figure III.1a), l'écoulement est canalisé par deux plans isothermes de 300 K chacun. Dans le cas d'un flux vertical (Figure III.1b), l'écoulement longe la pointe et arrive sur le plan cathodique dont la température reste constante à 300 K.

La zone étudiée est divisée en cellules de petit volume sur lesquelles les propriétés sont supposées uniformes. Le maillage structuré, réalisé à l'aide du logiciel GAMBIT® (Ansys), divise le domaine de calcul en 40000 mailles élémentaires carrées de 50 $\mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$ de côté. Cette discrétisation uniforme de la répartition des points de maillage permet de ne pas perdre de l'information sur la diffusion de l'énergie et de la matière dans la géométrie. Ce choix permet de résoudre les effets d'échelles entre des phénomènes localisés dans le volume des décharges et ceux étendus à tout le domaine. En effet, la taille des cellules élémentaires permet de gérer l'injection des termes sources dans le canal des décharges (dont le diamètre actif est voisin de 50 μm) tout en conservant une définition suffisante du maillage pour décrire les phénomènes physico-chimique à l'échelle de tout le domaine.

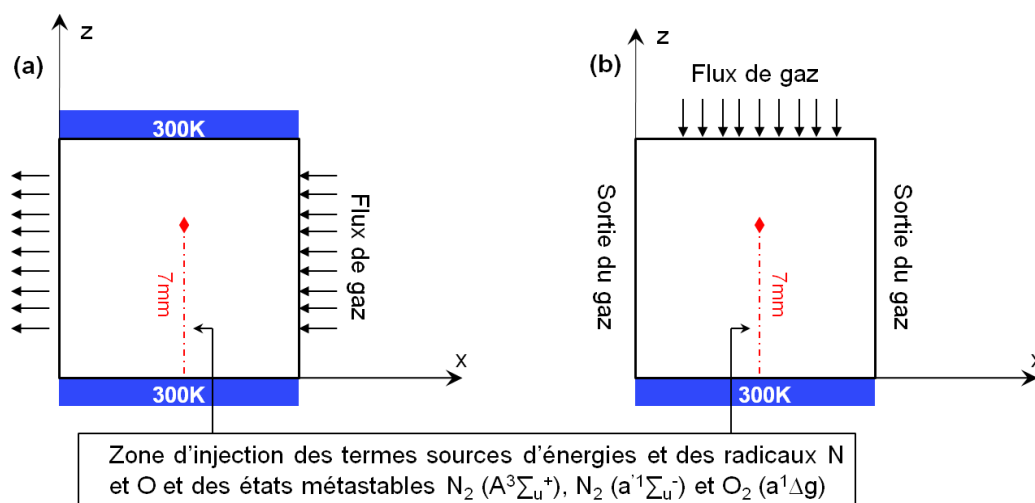


Figure III.1 : Domaine d'étude d'une décharge mono-filamentaire (a) vitesse d'écoulement latérale, (b) vitesse d'écoulement verticale.

Lors de la simulation numérique, un des aspects les plus importants est la bonne estimation des conditions aux limites du système étudié. Plusieurs types de conditions d'entrée sont disponibles dans le code FLUENT : la vitesse du gaz, le débit massique, la pression, etc. Ces informations permettent de caractériser l'écoulement entrant dans notre domaine de calcul. Les conditions aux limites de l'écoulement sont imposées à l'entrée, à la sortie et aux parois de la géométrie. Le tableau III.2 donne l'ensemble de ces conditions aux limites.

Géométrie III.1a	Géométrie III.1b
$\bar{u}(x, z = z_{\max}) = \bar{u}(x, z = z_{\min}) = 0$ $T(x, z = z_{\max}) = T(x, z = z_{\min}) = 300K$ $\bar{u}(x = x_{\max}, z) = -u_0 \text{ m.s}^{-1}$ $Y_{O_2} = 0,2220817$ $Y_{N_2} = 0,7779183$	$u(x, z = z_{\min}) = 0$ $T(x, z = z_{\min}) = 300K$ $\bar{u}(x, z = z_{\max}) = -u_0 \text{ m.s}^{-1}$ $Y_{O_2} = 0,2220817$ $Y_{N_2} = 0,7779183$

Tableau III.2 : Les conditions aux limites. Y_{O_2} et Y_{N_2} représentent les fractions massiques des espèces O_2 et N_2 .

Les différentes équations de conservation de la densité de masse, de la quantité de mouvement, de l'énergie et des espèces chimiques ainsi que l'équation des états vibrationnels décrites dans le chapitre II ont été prises en compte et sont résolues dans le domaine de la figure III.1. Les valeurs des sommes de résidus normalisés (équation (III.39) permettant de contrôler la convergence et la précision numérique de nos résultats sont rapportées dans le tableau III.3.

Equation	Tolérance
Continuité	10^{-3}
Vitesse	10^{-3}
Énergie	10^{-6}
Vibrationnels	10^{-6}
Atomes	10^{-3}
Molécules	10^{-3}
métastables	10^{-3}

Tableau III.3 : Valeurs des sommes de résidus normalisés utilisés pour établir le critère de convergence des solutions des différentes équations.

II.4 Traitement du couplage décharge – dynamique du gaz

La décharge est simulée par l'injection dans l'espace inter-électrode de termes sources d'énergie, de quantité de mouvement et d'espèces chimiques. Ces termes sources sont injectés durant 150 ns et toutes les 0,1 ms.

Les principales difficultés sont l'estimation fiable de ces termes et leur intégration dans le domaine d'étude sachant que l'interaction décharge-gaz s'effectue dans un filament très mince confiné dans un volume petit par rapport au volume total du réacteur.

L'estimation quantitative des termes sources a été faite grâce à la confrontation de résultats de simulation de la phase décharge avec des résultats expérimentaux (Eichwald 2008). Le groupe PRHE possède un code de résolution du modèle électro-dynamique couplé à la production d'espèces actives dont les résultats ont été validés par la confrontation des courbes de courant simulées et expérimentales ainsi que par la reconstitution d'imagerie rapide. La bonne concordance des résultats « macroscopiques » (courbes de courant et imagerie) permet de valider indirectement les résultats « microscopiques » tels que les amplitudes et les profils des densités des espèces chargées, radicalaires et excitées ainsi que l'énergie déposée par la décharge dans le gaz.

A titre d'exemple, la figure III.2 montre le profil de la densité du radical O après le passage du primary streamer (profil à 78 ns) et après le passage du secondary streamer (profil à 150 ns). La simulation montre que 70% du radical O est généré au moment du développement du secondary streamer par des collisions dissociatives entre les électrons et les molécules d'oxygène par la réaction $e + O_2 \rightarrow O + O$. Ainsi, l'extension de la zone de forte concentration de O entre 6 et 7mm se superpose avec l'extension du secondary streamer. La densité de O est également importante au niveau du plan en raison de l'élévation du champ électrique porté par la tête du streamer quand ce dernier atteint la cathode.

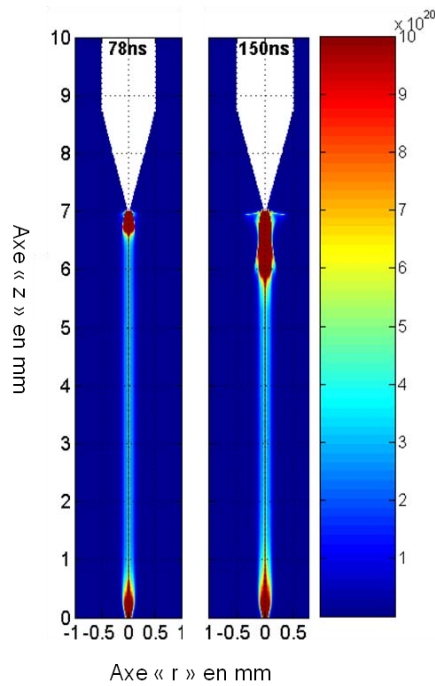


Figure III.2 : Exemple du profil du radical d'oxygène en m^{-3} (Ducasse 2006)

Les résultats de la figure III.2 sont obtenus avec des maillages très resserrés (variants de 1 à 10 μm) de manière à permettre la génération et le suivi des ondes de choc ionique et la formation du canal ionisé. Une définition aussi serrée du maillage n'est pas envisageable dans notre étude. Les termes sources sont donc moyennés sur la durée de la décharge et radialement dans un cylindre d'un diamètre de 50 μm . Les valeurs moyennes possèdent donc uniquement un profil dans la direction du canal ionisé (c'est-à-dire l'axe z sur les figures III.1 et III.2). Les expressions des termes sources moyens sont données par les relations suivantes :

Pour O par exemple,
$$\bar{S}_{l,O}(z) = \frac{1}{r_d} \frac{1}{t_d} \int_0^{r_d} \int_0^{t_d} s_O(t, r, z) dt dr \quad (\text{III.5})$$

$$\bar{S}_h(z) = \frac{1}{r_d} \frac{1}{t_d} \int_0^{r_d} \int_0^{t_d} (f_{ex} + f_t) \vec{J} \cdot \vec{E} dt dr \quad (\text{III.6})$$

$$\bar{S}_v(z) = \frac{1}{r_d} \frac{1}{t_d} \int_0^{r_d} \int_0^{t_d} f_v \vec{J} \cdot \vec{E} dt dr \quad (\text{III.7})$$

$$\bar{S}_{qm}(z) = \frac{1}{r_d} \frac{1}{t_d} \int_0^{r_d} \int_0^{t_d} s_{qm}(t, r, z) dt dr \quad (\text{III.8})$$

t_d est la durée de la décharge (150 ns dans notre cas), r_d est le rayon actif de la décharge (25 μm dans notre cas soit un diamètre de 50 μm) et $s_O(t, r, z)$ le terme source de la production du radical O durant la phase de décharge. Des expressions identiques sont utilisées pour les 4 autres espèces (N, N_2 ($\text{A}^3\Sigma_u^+$), N_2 ($\text{a}^1\Sigma_u^-$) et O_2 ($\text{a}^1\Delta_g$)) générées durant les phases de décharge. Toutes les grandeurs à intégrer sont obtenues par la simulation complète de la phase de décharge.

Des travaux récents, effectuée dans le groupe (Kacem 2011) à l'aide d'un logiciel couplant la dynamique de la décharge avec celle du gaz neutre, ont montré que le choc thermique induit par le passage des décharges génère une onde de pression qui transporte dans le volume une partie de l'énergie thermique déposée dans le canal ionisé. Ces résultats, obtenus dans les conditions de simulation de notre étude, montrent que dès 0,3 μs , la température au voisinage très proche de la pointe peut chuter d'environ un facteur 2. Ces simulations ont été réalisées avec des pas spatiaux resserrés (de 1 à 10 μm) permettant de suivre à la fois la dynamique de la décharge et celle des ondes de pression. Cependant, la propagation des ondes de pression ne peut pas être reproduite par le logiciel FLUENT avec le maillage choisi dans ce travail (50 $\mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$). Pour ce faire, il faudrait resserrer le maillage ce qui implique une augmentation du temps de calcul jusqu'à des durées rédhibitoires. De ce fait, et de manière à ne pas surestimer la montée en température du gaz au voisinage de la pointe, nous avons établi une autre expression du terme source \bar{S}_h :

$$\bar{S}_h(z) = \rho C_p \frac{1}{r_d} \frac{1}{t_p^2} \int_0^{r_d} \int_0^{t_p} T(t_p, r, z) dt dr \quad (\text{III.9})$$

Dans cette nouvelle expression, t_p vaut $0,3\mu\text{s}$, temps au bout duquel les variations de température dans le canal ionisé sont gouvernées uniquement par la diffusion thermique et non plus par la dynamique des ondes de pression. $T(t_p, r, z)$ est le profil spatial de la température du gaz à l'instant t_p . Le choix de cette représentation sera justifié au paragraphe III.3.3.

La figure III.3 donne une représentation graphique de la manière dont les termes sources sont injectés au cours de la simulation. Dans le maillage structuré utilisé, la zone de décharge correspond à une unique colonne de 140 mailles carrées de $50\mu\text{m}$ de coté. Dans chacune de ces mailles, les différents termes sources calculés par les expressions précédentes (équations (III.5) à (III.8)) sont maintenus constants durant la durée de la décharge t_d (ou t_p dans le cas de l'expression (III.9)) puis annulés jusqu'à $0,1\text{ms}$ (pour une fréquence de répétition de 10kHz).

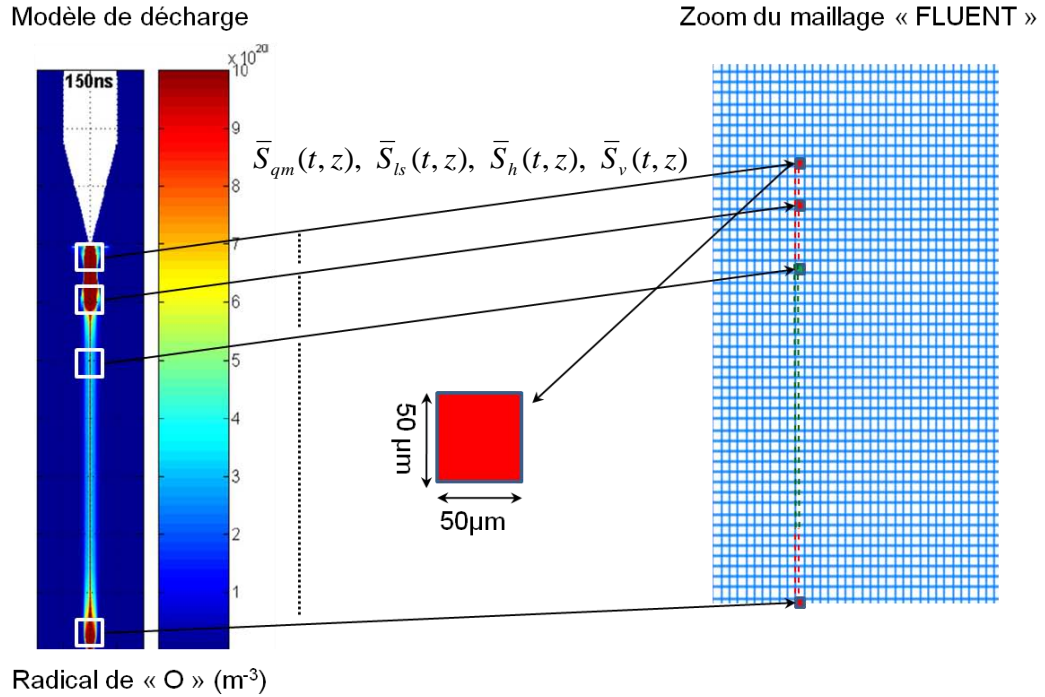


Figure III.3 : Méthode d'injection des termes sources dans les mailles

III. Résultats et analyse

III.1 Phase de décharge

III.1.1 Validation des termes sources d'injection

Le but dans cette première partie est de vérifier la capacité du code FLUENT à reproduire les profils spatiaux des densités des radicaux et de l'énergie injectés durant la phase de décharge en implémentant les termes sources tels que décrits dans le paragraphe précédent et pour nos conditions de simulation. La difficulté de cette étape est liée au fait de confiner des énergies très importantes dans des volumes d'injection très petits.

Les figures III.4 à III.6 comparent, dans la zone d'injection, les profils axiaux de la densité des radicaux, des métastables et de la température du gaz calculés à l'aide d'une simulation complète de la phase décharge (Ducasse 2006) et à l'aide du code FLUENT (Meziane 2011). Les profils de densité sont comparés au bout de 150ns alors que le profil de température est comparé à 300 ns, c'est-à-dire après la formation de l'onde de pression. Sous FLUENT, le profil de la température a été obtenu à l'aide de l'injection du terme source (III.9).

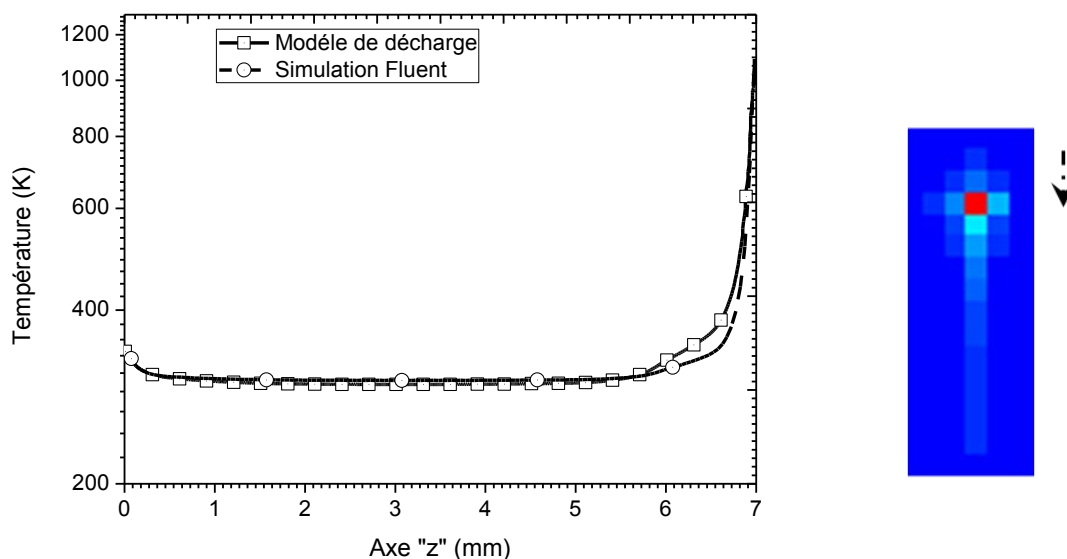


Figure III.4 : Comparaison du profil axial de la température à l'instant $t = t_p = 300$ ns et zoom de la cartographie 2D de la température au voisinage de la pointe.

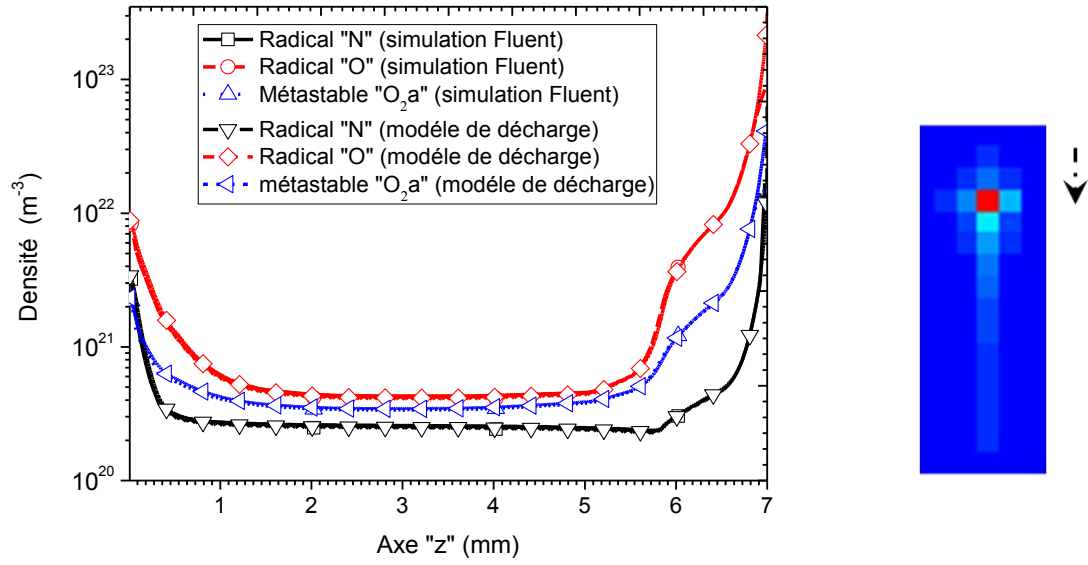


Figure III.5 : Comparaison des profils axiaux des radicaux N et O et du métastable O_2 ($a^1\Delta_g$) à l'instant $t = 150$ ns et zoom de la cartographie 2D du radical O.

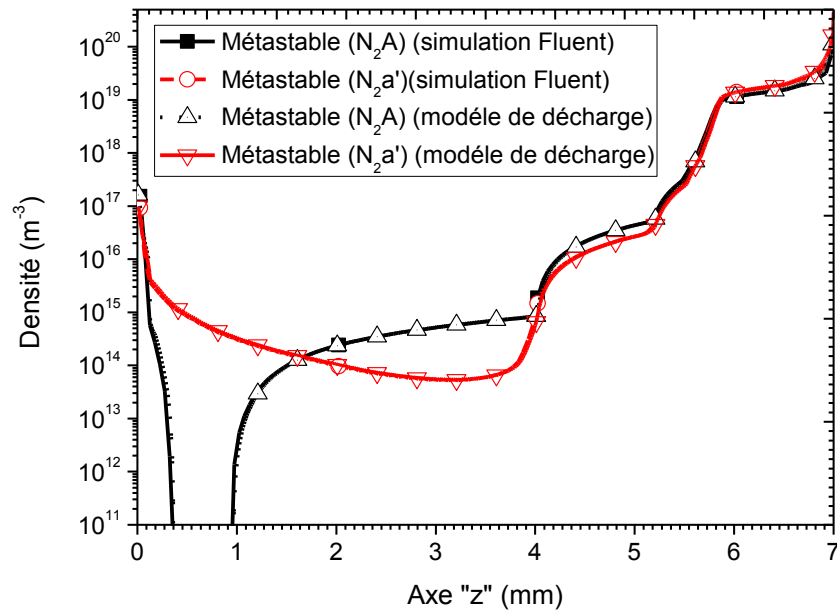


Figure III.6 : Comparaison des profils axiaux des métastable N_2 ($\text{A}^3\Sigma_u^+$), N_2 ($\text{a}^1\Sigma_u^-$) à l'instant $t = 150$ ns

On constate que la procédure d'injection des termes sources reproduit bien les résultats du modèle complet de la décharge puisque les courbes de la température et des espèces actives se superposent sur quasiment toute la longueur du canal d'injection (voir les figures III.4 à III.6). Pour les espèces actives, quelques légères différences visibles autour de la pointe et près du plan, s'expliquent par la prise en compte dans la simulation FLUENT et dès les premiers instants du calcul, des phénomènes de diffusion moléculaire. En effet, la simulation de la phase de décharge (courbes « modèle décharge » sur les figures III.5 à III.6) ne prend en compte que les réactions de création des espèces actives par impact électronique mais pas leur diffusion dans le mélange. Dans le code FLUENT et à cause des très forts gradients de densité entre la zone d'injection et les cellules adjacentes, les phénomènes de diffusion apparaissent dès 70 ns. Les conséquences sont visibles par exemple sur la cartographie 2D associée au radical O au voisinage de la pointe (voir figure III.5) à 150 ns. La diffusion conduit à un élargissement du profil des radicaux qui sont transportés en dehors du canal d'injection.

On peut remarquer sur les figures III.5 et III.6 que les densités des espèces actives générées par le passage d'une décharge sont très importantes au voisinage des électrodes en comparaison de leur concentration dans le cœur du canal. En effet, dans nos conditions de simulation, la valeur du champ géométrique autour de la pointe dépasse 1200 Td à cause du très faible rayon de courbure de la pointe (20 μm). Les processus de dissociation et d'excitation sont ainsi très efficaces sur un laps de temps de quelques nanosecondes, temps nécessaire à la mise en place de la charge d'espace ionique et à la modification du champ autour de la pointe. Néanmoins, cela est suffisant pour accumuler une très forte concentration d'espèces actives sur la pointe (jusqu'à 10^{23} m^{-3} pour le radical O). L'augmentation de la densité des espèces au voisinage du plan vient de l'augmentation du champ électrique dans la tête du primary streamer lors de son arrivée sur le plan. Ce phénomène rend les processus de formation des espèces actives plus efficaces. Enfin, on constate que la densité des radicaux et des états métastables est globalement plus grande dans une zone qui s'étend jusqu'à 1 mm de la pointe. Ceci est surtout visible sur la densité du radical O et sur la densité des états métastables sur les figures III.5 et III.6. Cette zone correspond en fait à la zone d'extension du secondary streamer dans laquelle le champ électrique voisin de 100 Td permet de réalimenter la région en espèces actives.

La comparaison entre les profils de température se fait après la génération de l'onde de pression, c'est-à-dire à 300 ns. Les profils sont très proches et la montée en température sur la pointe atteint dans les deux simulations 1200 K. Toutefois, la température donnée par le code FLUENT est plus faible dans la zone d'extension du secondary streamer entre 6 et 7 mm. Ceci peut s'expliquer par un phénomène de diffusion thermique plus important dans le cas de la simulation FLUENT à cause de la discontinuité initiale de température induite par le fort gradient thermique entre les cellules du canal d'injection et les cellules adjacentes. Cette discontinuité n'existe pas dans la simulation complète de la phase de décharge puisque la précision du maillage permet une continuité des profils et donc des gradients correspondant qui gouvernent les flux thermiques.

III.1.2 Remarques sur l'optimisation des durées de simulation

La durée physique des phénomènes simulés dans ces premiers tests s'étend au maximum jusqu'à 300 ns. Le logiciel FLUENT résout le système d'équations (II.6 à II.18) avec les termes sources (III.5, III.7 et III.9) soit 15 équations très fortement couplées incluant 10 équations de conservation pour chaque espèce chimique (réagissant selon 24 réactions chimiques) et 2 équations de conservation de la quantité de mouvement (une pour chaque direction d'étude dans le cas 2D). Ces équations sont résolues dans chacune de 40000 mailles qui constituent le domaine d'étude. Cette complexité peut engendrer des durées de calcul prohibitives. En effet, les premiers tests ont été effectués à l'aide d'une version 4.0 de FLUENT sur un PC du groupe (pentium® 4CPU, 3,00GHz et 1,00Go de RAM). La durée de calcul correspondant à une durée physique de 150ns excédait alors 22 h avec un pas de temps d'évolution de 1 ns.

Face à cette difficulté, nous nous sommes tournés vers le Centre Interuniversitaire de Calcul de Toulouse (CICT) (Webmaster 2008) qui héberge le Supercalculateur « Hypérion » du groupement scientifique CALMIP (Calcul en Midi-Pyrénées) (Calmip 2007). Cette migration vers le CICT nous a obligés à passer à une version plus récente de FLUENT (V.6) puis (V.12) récemment. On peut noter que le passage à la version (V.6) a demandé un temps d'adaptation important, nécessaire à la prise en main du nouveau logiciel et à la réécriture de l'ensemble des sous-routines en langage « C » au lieu du « Fortran » utilisé dans l'ancienne version. Le passage sur la machine Hypérion nous a permis de réduire le temps de calcul d'une manière

très appréciable. Le temps de calcul pour la même durée physique et dans les mêmes conditions de simulation a été diminué d'un facteur 7 soit presque 3 h pour une durée physique de 150 ns.

Dans le but de réduire encore la durée de calcul, une étude paramétrique a été menée durant la phase de décharge en utilisant trois pas de temps différents 1 ns, 5 ns et 10 ns. La comparaison des résultats nous montre que l'augmentation du pas de temps conduit à une chute de quelques degrés de la température maximale calculée au voisinage de la pointe. La diminution est de 2,3% lorsque l'on passe d'un pas de temps de 1 ns à 5 ns et de 4,9% lorsque l'on passe de 1ns à 10ns. Par contre, les variations de température sont négligeables dès que la température est inférieure à 500 K, c'est-à-dire sur une grande partie du canal d'injection (cf. Figure III.4). Par contre, nous avons constaté que l'évolution de la densité des espèces actives est indépendante du pas de temps utilisé. Pour reproduire au mieux le profil de température, notre choix s'est porté sur un pas de temps d'évolution de 1ns durant la phase de décharge.

Cette étude comparative nous a montré que l'influence du pas de temps est négligeable sur le profil de température lorsque cette dernière reste inférieure à 500 K. Ce seuil de température est vite atteint durant la phase de post-décharge y compris au voisinage de la pointe, ce qui laisse une souplesse dans le choix des pas de temps durant la phase de post-décharge. Ainsi, d'autres études réalisées dans le cadre de ce travail ont montré que dans la phase post-décharge, le pas de temps peut être augmenté jusqu'à des valeurs importantes (100 ns) sans modifier de façon notable la température calculée (moins de 1 K).

III.2 Phase de post-décharge en régime statique

Après avoir validé la capacité du code développé sous FLUENT à reproduire les profils spatiaux des densités des radicaux et de la température du gaz durant la phase de décharge, nous allons suivre le comportement du gaz durant la phase de post-décharge en régime statique c'est-à-dire sans écoulement. Ceci va nous permettre de nous familiariser avec les phénomènes de transport (convectif et diffusif) induits par le passage d'une décharge et avec le comportement réactif du mélange.

III.2.1 Etude des effets thermiques

La première analyse porte sur l'influence de la relaxation des états excités vibrationnels sur la température du gaz. Pour les conditions de simulation précisées au paragraphe II.1, le temps de relaxation de l'énergie vibrationnelle en énergie thermique a été choisi égal à $50 \mu\text{s}$. La figure III.7 permet d'estimer l'élévation de la température du gaz due à la relaxation des états vibrationnels. On constate que le différentiel est relativement faible dans nos conditions de simulation. L'effet de la relaxation des états vibrationnels conduit à une élévation de la température de l'ordre de 4 K le long du canal ionisé.

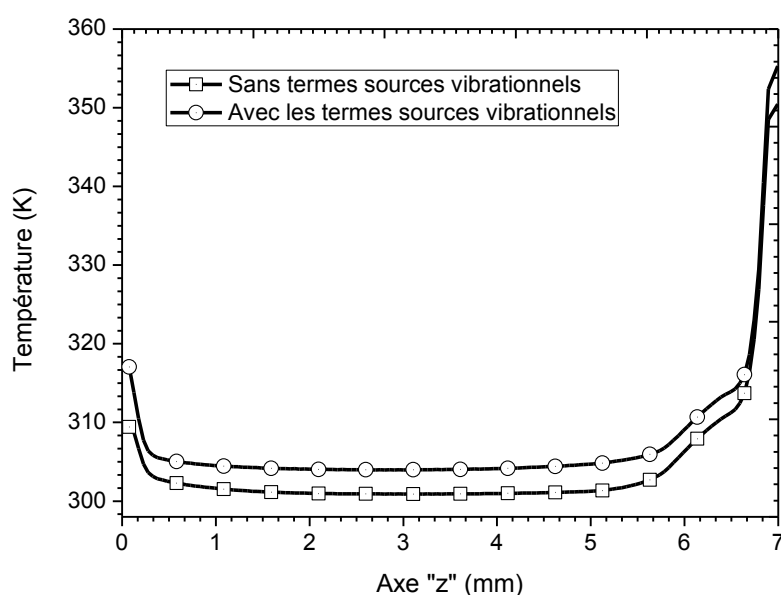


Figure III.7 : Evolution de la température le long de l'axe de la décharge à l'instant $t = 50 \mu\text{s}$ avec ou sans la prise en compte de la relaxation des états vibrationnels en énergie thermique

La figure III.8 montre les cartographies du champ de température aux instants $t = 10 \mu\text{s}$ et $t = 0,1 \text{ ms}$. Le temps $0,1 \text{ ms}$ correspond à la fin de la première phase de post décharge, juste avant le passage d'une nouvelle décharge. Au bout de $10 \mu\text{s}$, on constate que la température reste confinée sur l'axe de la décharge et que sa valeur maximale localisée à la pointe est passée de 1200 K après 300 ns (voir figure III.4) à moins de 500 K . Ceci s'explique par la présence de forts flux de chaleur engendrés par l'inhomogénéité de la température et qui transportent, dans le volume du gaz, une partie de l'énergie thermique accumulée autour de la pointe. Ce

phénomène est clairement visible à 0,1 ms. En effet, à la fin de la phase de décharge (voir figure III.8b), le canal de température entre les électrodes s'élargit sur un diamètre de 360 μm et de quelques millimètres autour de la pointe. La température a quasiment relaxé et sa valeur maximale baisse à 329 K autour de la pointe et à moins de 304 K le long de l'axe. On peut noter que jusqu'à 50 μs , la baisse de température le long de l'axe de la décharge par diffusion thermique est compensée en partie par l'énergie provenant de la relaxation des états excités vibrationnels en énergie thermique.

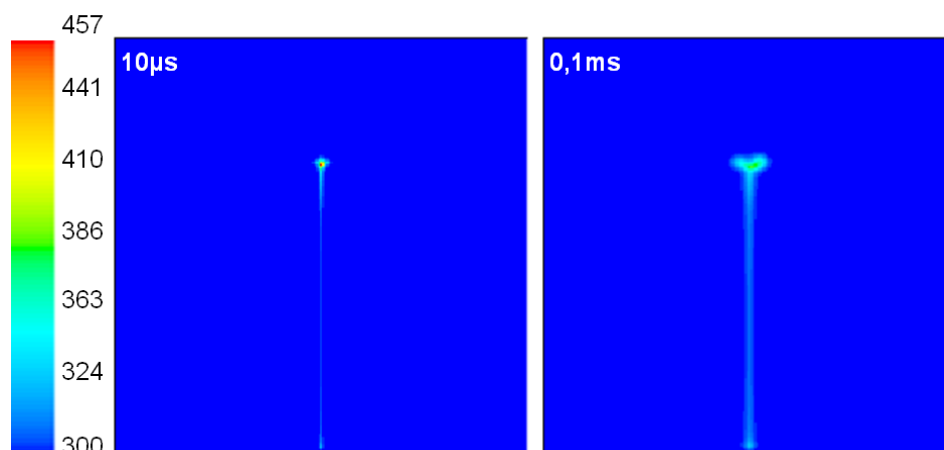


Figure III.8 : Cartographies 2D du champ de température du gaz en K (domaine 1 cm x 1 cm)

La figure III.9 donne les cartographies de la densité de masse du gaz à 10 μs et 0,1 ms. Ces dernières sont le « négatif » des cartographies de température de la figure III.8. Cela indique que les variations de température ont lieu à pression quasi constante et que la densité s'adapte en vérifiant la loi des gaz parfaits (équation (II.36)). Ceci est corroboré par l'analyse des cartographies de pression qui indiquent que les variations de pression restent inférieures à 150 Pa. La comparaison des cartographies de température et de densité montre très clairement l'influence de la relaxation du réservoir d'énergie vibrationnel sur la diminution de la densité du gaz le long du canal ionisé. Ces variations de densité ont été observées par plusieurs auteurs à l'aide des techniques de spectroscopie Schlieren (Ono 2004). Il est évident que ces variations de densité peuvent influencer le développement des décharges successives et sont une des contributions aux effets mémoires accumulés d'une décharge à l'autre. Nous rappelons néanmoins, que par souci de simplification, nous ne prenons pas en compte dans ce

travail la contre-réaction d'une quelconque modification de la densité du gaz sur le développement des décharges et donc sur les termes sources.

Enfin, nous avons pu constater que les termes sources de transferts de quantité de mouvement n'avaient aucune influence sur la mise en mouvement du gaz dans nos conditions de simulation.

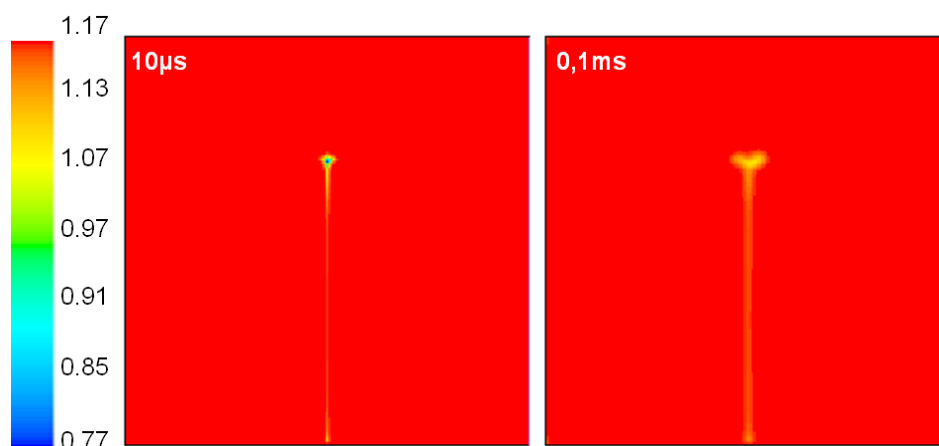


Figure III.9 : Cartographies 2D de la densité de masse du gaz (Kg m^{-3}) (domaine $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$)

III.2.2 Etude de la réactivité du mélange

Les espèces radicalaires et excitées sont créées essentiellement durant la phase de décharge près de la pointe, par des collisions entre les électrons et les molécules majoritaires du gaz (N_2 et O_2). Ces espèces radicalaires et excitées (voir les figures III.5 et III.6) sont à l'origine de la réactivité chimique et de la création de nouvelles espèces pendant la phase post décharge. Dans ce paragraphe, nous allons analyser l'évolution spatiotemporelle des différentes espèces prises en compte dans notre modèle et, en particulier, les mécanismes responsables de la création d'ozone.

Les figures III.10 et III.11 représentent les cartographies de la densité de l'oxygène atomique O et de l'ozone O_3 aux instants $10 \mu\text{s}$ et $0,1 \text{ ms}$. On remarque que la densité du radical O diminue durant la phase de post-décharge à l'inverse à la densité de O_3 qui augmente. La densité de O diminue d'une valeur maximale localisée à la pointe de $1,58 \cdot 10^{23} \text{ m}^{-3}$ à 150 ns

(voir figure III.5), à une densité de $5,83 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ au bout de $10 \mu\text{s}$ puis à une densité de $3,48 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ à la fin de la phase post décharge. La consommation d'oxygène atomique est due principalement aux réactions à trois corps (8) $\text{O} + \text{O}_2 + \text{N}_2 \rightarrow \text{O}_3 + \text{N}_2$ et $\text{O} + \text{O}_2 + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_3 + \text{O}_2$ référencées dans le tableau de l'annexe A. Ces réactions produisent de l'ozone en concentration importante là où se trouve le radical O. La simulation montre que l'ozone est créé dès les premiers instants de la phase post décharge parce que les réactions (8) responsables de sa création sont très rapides. Ces deux réactions sont responsables de la chute de la densité des atomes d'oxygène O à la pointe et sur l'axe de la décharge. A l'inverse, elles permettent à l'ozone de croître sur l'axe et d'atteindre une densité maximale à la pointe voisine de $6 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ vers $10 \mu\text{s}$ puis une densité maximale de $9,8 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ vers $50 \mu\text{s}$. A partir de cet instant, la densité d'ozone baisse lentement pour atteindre $9,5 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ à la fin de la phase post-décharge (voir la figure III.11). Cette évolution s'explique d'une part, à cause de la diminution de la concentration d'oxygène atomique qui alimente les réactions (8) et d'autre part, à cause de la diffusion progressive de l'ozone dans le volume du réacteur. De plus, on peut noter la grande influence des variations de la température et de la densité du gaz sur l'efficacité de production d'ozone par les réactions (8). En effet, les coefficients de ces deux réactions varient en $1/T^{2,3}$, ce qui indique que toute augmentation de température ralentit la cinétique de transformation de l'atome O en O_3 . De plus, une diminution de la densité du gaz réduit en proportion la probabilité de rencontre des espèces mises en jeu dans ces deux réactions à trois corps.

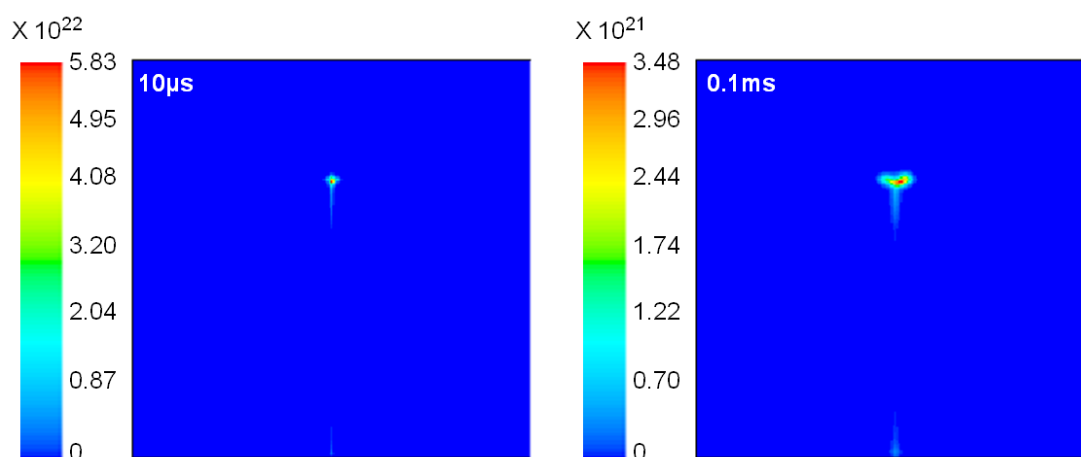


Figure III.10 : Cartographies de la densité de O en m^{-3} (domaine $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$)

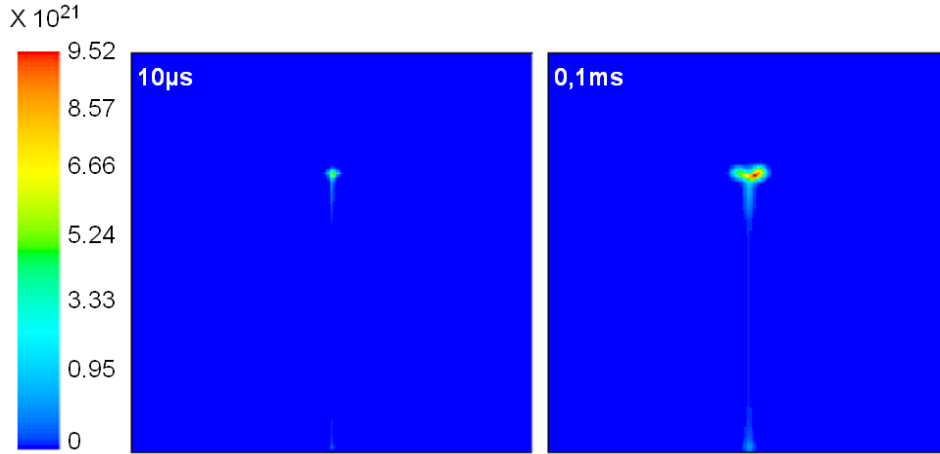


Figure III.11 : Cartographies de la densité de O_3 en m^{-3} (domaine 1 cm x 1 cm)

La figure III.12 représente les cartographies du métastable $O_2(a^1\Delta g)$. Cette molécule ainsi que les métastables de N_2 sont créés durant la phase de décharge. Dès 3 μs , la simulation montre que le métastable $N_2(a^1\Sigma_u^-)$ est le premier qui a été totalement consommé à cause de la rapidité de la réaction (18) $N_2(a^1\Sigma_u^-) + O_2 \rightarrow N_2 + 2O$. Ensuite, à partir de 10 μs , on constate qu'il ne reste plus de métastable $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ dans le réacteur à cause des réactions (12) $N_2(A^3\Sigma_u^+) + O_2 \rightarrow N_2 + O_2(a^1\Delta g)$ et (13) $N_2(A^3\Sigma_u^+) + O_2 \rightarrow N_2 + 2O$. Cette consommation des métastables de N_2 s'explique donc par leur interaction très rapide avec la molécule d'oxygène. A la fin de la phase de post décharge, seul le métastable $O_2(a^1\Delta g)$ présente encore une concentration importante autour de la pointe. Sa densité baisse d'un ordre de grandeur, passant de $2 \cdot 10^{22} m^{-3}$ à la fin de la phase de décharge (voir la figure III.5 au voisinage la pointe) à plus de $2 \cdot 10^{21} m^{-3}$ à la fin de la phase post décharge (voir la figure III.12b). Ceci traduit la faible efficacité des réactions (20) à (23) dans le tableau de l'annexe A.

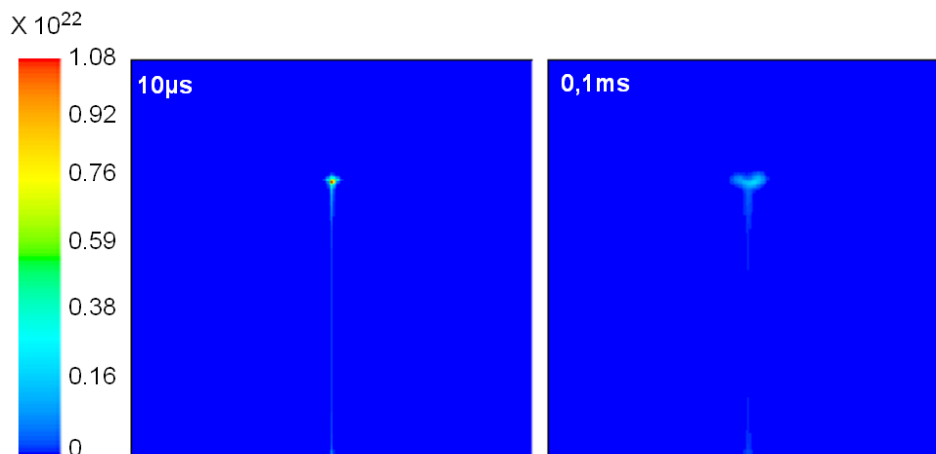


Figure III.12 : Cartographies de la densité de $O_2(a^1\Delta_g)$ en m^{-3} (domaine $1\text{ cm} \times 1\text{ cm}$)

Les figures III.13 à III.15 montrent les cartographies du radical N et des oxydes d'azote (NO et NO_2) aux instants $10\text{ }\mu\text{s}$ et $0,1\text{ ms}$. On rappelle que la densité du radical N augmente rapidement durant la phase de décharge à cause de la dissociation de la molécule majoritaire N_2 par impact électronique au voisinage de la pointe. La production de l'oxyde d'azote NO est essentiellement due à la réaction (1) $N + O_2 \rightarrow NO + O$. Cette réaction consomme entièrement le radical N qui passe d'une densité voisine de 10^{22} m^{-3} au voisinage de la pointe à 150 ns (voir la figure III.5) à une densité maximale de 10^{16} m^{-3} au bout de $10\text{ }\mu\text{s}$ (voir figure III.13a). Sa densité, de l'ordre de 10^4 m^{-3} à $0,1\text{ ms}$ peut être considérée comme totalement négligeable. La consommation de N par la réaction (1) entraîne une augmentation très localisée de la concentration des oxydes d'azote NO et NO_2 (voir les figures III.14 et III.15 à $10\text{ }\mu\text{s}$). En effet, la molécule NO formée par la réaction (1) s'oxyde rapidement pour former NO_2 par les réactions (4) $O + NO + M \rightarrow NO_2 + M$ et (5) $O_3 + NO \rightarrow NO_2 + O_2$ (voir annexe A). Cette interdépendance explique la localisation identique à $0,1\text{ ms}$ des maximums de concentration des espèces N, NO et NO_2 sur les figures III.13, III.14 et III.15.

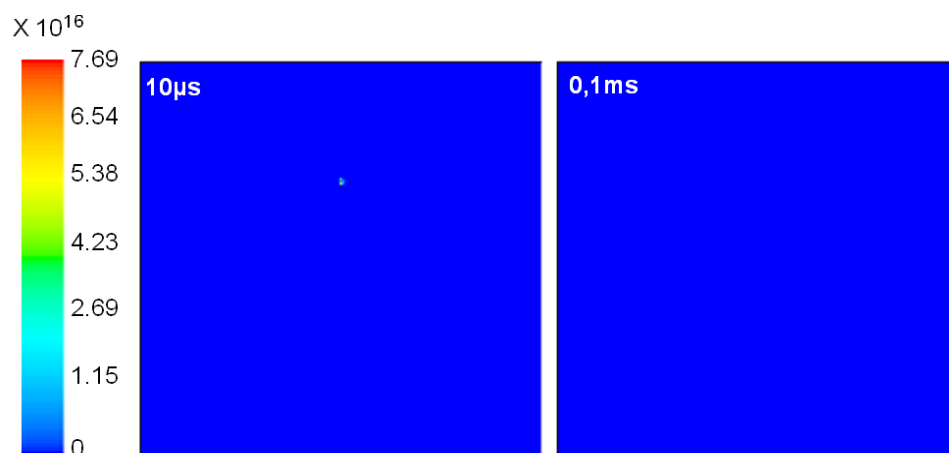


Figure III.13 : Cartographies de la densité de N en m^{-3} (domaine $1\text{ cm} \times 1\text{ cm}$)

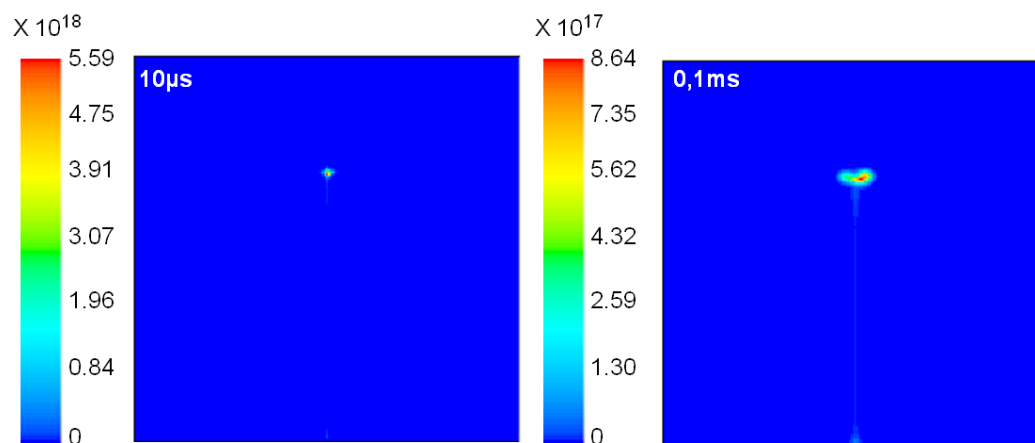


Figure III.14 : Cartographies de la densité de NO en m^{-3} (domaine $1\text{ cm} \times 1\text{ cm}$)

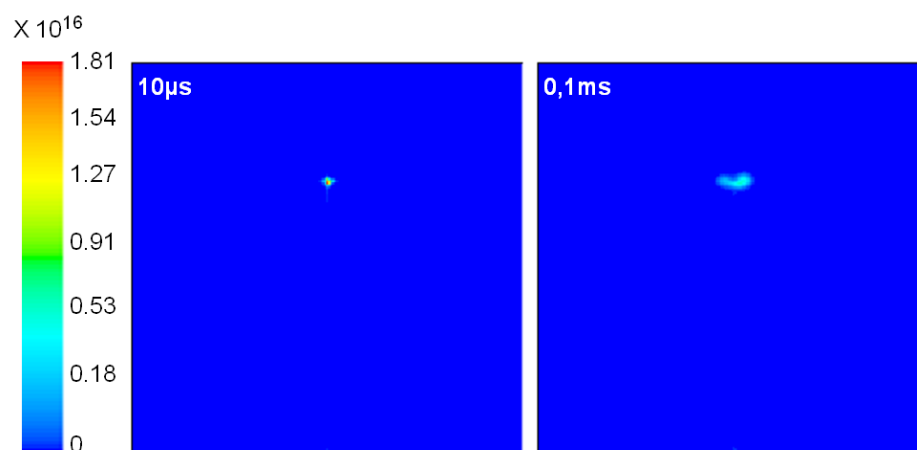


Figure III.15 : Cartographies de la densité de NO_2 en m^{-3} (domaine $1\text{ cm} \times 1\text{ cm}$)

La présence des espèces NO, NO₂, O₃ et O en concentration suffisante tout au long de la phase de post-décharge génère un cycle d'oxydo-réduction entre les oxydes d'azote NO et NO₂ par l'intermédiaire des réactions (4), (5) et (6). L'oxydation de NO en NO₂ dans les réactions (4) et (5) est contre balancée par la réduction de NO₂ en NO dans la réaction (6). L'efficacité de ces réactions étant fonction de la densité (la réaction (4) est une réaction à trois corps) et de la température du gaz, nous pouvons constater l'influence de ces deux paramètres sur les profils des densités de NO et NO₂ en comparant à 0,1 ms leurs cartographies avec celles de la température et de la densité du gaz.

III.3 Phase de post-décharge en présence d'un écoulement

Dans le but de visualiser le couplage entre la décharge électrique et l'écoulement du gaz et pour analyser l'effet de la vitesse d'écoulement sur la réactivité chimique et la température du gaz, nous imposons un flux initial de 5 m.s⁻¹ à l'entrée du domaine. L'écoulement peut être soit latéral soit vertical (voir figure III.1). Nous étudierons également dans ce paragraphe l'influence du passage périodique des décharges entre la pointe et le plan.

III.3.1 Ecoulement latéral traversé par une unique décharge

La figure III.16 montre la cartographie du champ de température à 10 μs et 0,1 ms. Un flux latéral de 5 m.s⁻¹ est imposé, qui traverse le domaine de droite à gauche (voir la figure III.1). En comparant les figures III.8a et III.16a, on constate qu'au bout de 10μs, les deux champs de température sont très proches avec ou sans écoulement. A cet instant, les effets du transport convectif sont faibles. Cependant, nous pouvons constater une légère dissymétrie dans le profil de température au voisinage de la pointe sur la figure III.16a indiquant un transport d'énergie dans le sens du flux. Ceci a pour effet d'abaisser la température maximum qui est voisine de 400 K au lieu des 450 K dans le cas statique. Par contre, à l'instant 0,1 ms, l'effet du flux convectif prédomine sur les phénomènes de diffusion. L'énergie déposée par la décharge est transportée, dans le même sens d'écoulement, vers les zones les plus froides. En comparant avec le cas statique à l'instant 0,1 ms, on constate que nous avons perdu environ 14 K sur la température maximale au voisinage de la pointe.

La redistribution des profils de température et de densité va influencer l'efficacité de toutes les réactions chimiques qui font intervenir les espèces majoritaires (N_2 et O_2) et dont les coefficients de réaction sont des fonctions de la température (loi d'Arrhenius).

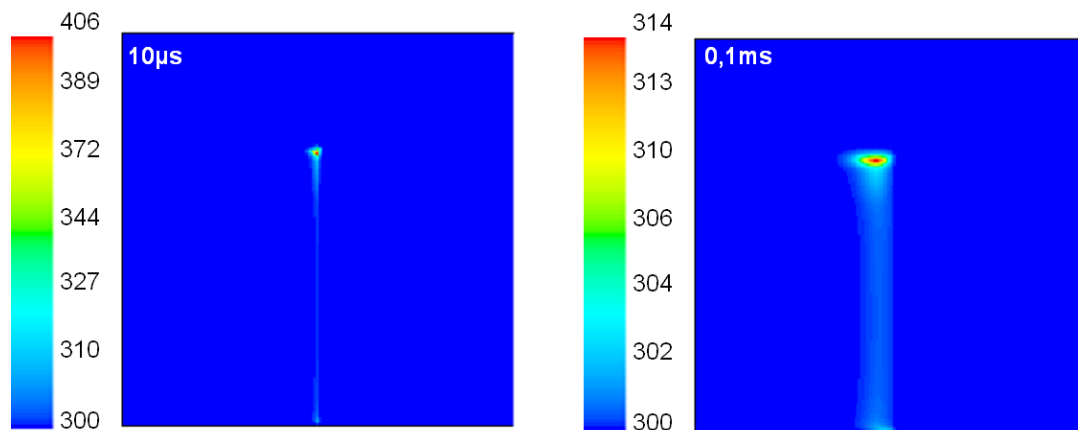


Figure III.16 : Cartographies de la température en K avec un flux latéral de 5 m.s^{-1} (domaine $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$)

La figure III.17 montre l'évolution spatiotemporelle de l'ozone et de l'oxygène atomique à la fin de la phase post décharge, lorsque la vitesse d'écoulement est égale à 5 m.s^{-1} . En comparant ces figures avec celles de la simulation statique (voir figures III.10b et III.11b), on remarque que les radicaux O et O_3 occupent une zone plus étendue dans le réacteur. Les cartographies montrent la formation d'un panache de concentration au voisinage de la pointe, qui s'étend dans le sens du flux jusqu'à environ $1,5 \text{ mm}$ de la zone d'injection. La répartition dans une zone plus étendue entraîne naturellement une dilution des espèces qui a une répercussion sur les maxima locaux. Ainsi, la valeur maximale de la densité de l'oxygène atomique passe de $3,48 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ en régime statique à $2,62 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ lorsqu'on impose un écoulement à 5 m.s^{-1} .

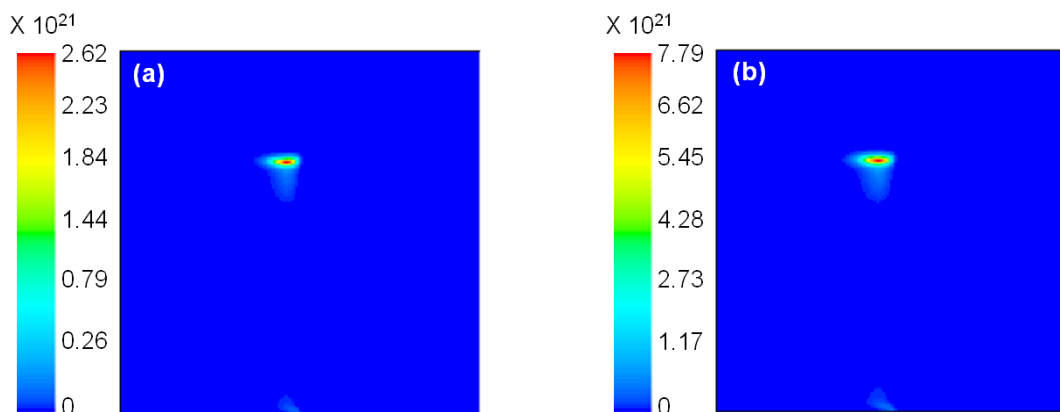


Figure III.17 : Cartographies des densités en m^{-3} à l'instant 0,1 ms avec un flux latéral de 5 m.s^{-1} : (a) O et (b) O_3

III.3.2 Effets des injections périodiques et de la direction de l'écoulement

Après avoir étudié l'évolution thermique, hydrodynamique et cinétique dans l'espace inter-électrodes au cours d'une séquence décharge/post-décharge, nous allons regarder l'effet de la répétition périodique de plusieurs séquences avec une fréquence de répétition de 10 kHz sur la production d'ozone. Dans cette partie, les traversées périodiques des décharges électriques seront étudiées en supposant deux directions d'écoulement : latérale et verticale (voir figure III.1). La vitesse d'écoulement initiale est maintenue dans tous les cas à 5 m.s^{-1} .

L'ensemble des figures III.18 à III.23 donne les cartographies de la température et des espèces O et O_3 pour deux directions d'écoulement et aux instants 0,2 ms, 0,5 ms et 1ms. Puisque la fréquence de répétition des phases de décharge est de 10 kHz, les temps de 0,2 ms, 0,5 ms et 1ms correspondent successivement à la fin de la deuxième phase de post décharge, la fin de la cinquième phase de post décharge et la fin de la dixième phase de post décharge. Ainsi, au bout de 1 ms, 10 décharges successives ont activé le mélange gazeux.

Globalement, les résultats des figures III.18 à III.23 montrent la formation de panaches de température et de concentration qui s'étendent à partir de la pointe dans la direction du flux. On remarque également que l'énergie thermique et la concentration d'ozone s'accumulent dans le réacteur d'une décharge à l'autre. En effet, les variations de température et d'ozone occupent un volume progressivement de plus en plus important au fil du temps à cause de

l'effet mémoire des précédentes décharges. Cependant, on constate que les profils de l'oxygène atomique sont identiques à la fin de chaque phase de post-décharge et ce quelle que soit la direction de l'écoulement (voir les figures III.19 et III.22). En effet, les radicaux atomiques O, qui sont injectés durant chaque phase de décharge, sont très rapidement consommés pour former de l'ozone par interaction avec O_2 . Bien qu'ils soient transportés dans le mélange et qu'ils y diffusent, leur concentration dans le panache de température décroît rapidement au profit d'une augmentation de la concentration d'ozone (voir les figures III.20 et III.23).

Au bout de 10 décharges, l'accumulation d'énergie dans le canal d'injection conduit à une augmentation locale de température de 18 K dans le cas d'un flux latéral et 27 K dans le cas d'un écoulement vertical (voir les figures III.18 et III.21 à 1 ms). De même, la concentration maximale d'ozone au bout de 10 décharges est légèrement plus élevée dans le cas d'un flux vertical (voir les figures III.20 et III.23 à 1 ms). Ceci s'explique par une vitesse de gaz plus faible au voisinage de la pointe dans le cas d'un flux vertical à cause de l'énergie thermique importante confinée à cet endroit et qui réoriente le flux vers les bords du domaine et réduit de ce fait la composante verticale du champ de vitesse. Cette baisse locale de vitesse réduit l'efficacité de dilution et confine de ce fait un peu plus l'énergie et l'accumulation d'espèces.

De manière à quantifier les effets d'accumulation, le tableau III.4 donne le taux d'augmentation de la densité maximale de quelques espèces chimiques entre la première et la dixième décharge. A titre d'exemple, la densité maximale d'ozone s'accroît de 31% entre la première et la dixième décharge dans le cas d'un flux latéral. On peut noter que les maximas sur les cartographies des figures III.18 à III.23 sont tous localisés sur la pointe.

	Flux latéral	Flux vertical
Oxygène atomique	9%	6,6%
Ozone	31%	57,5%
Monoxyde d'azote	20,35%	22,2%

Tableau III.4 : Taux d'augmentation des densités O, O_3 et NO entre la 1^{ère} et la 10^{ème} décharge.

Comme dans le paragraphe III.3.1 précédent, on remarque une très forte corrélation entre les cartographies de la température du gaz et celles de la concentration d’ozone. Ceci s’explique par la forte influence de la température et de la densité du gaz dans la formation d’ozone par les réactions à trois corps (8).

Flux latéral

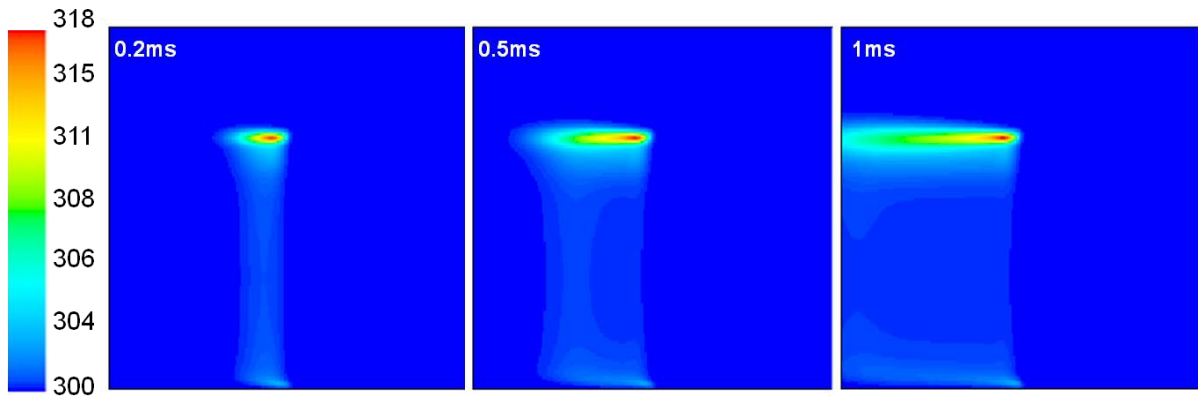


Figure III.18 : Cartographies de la température du gaz en K

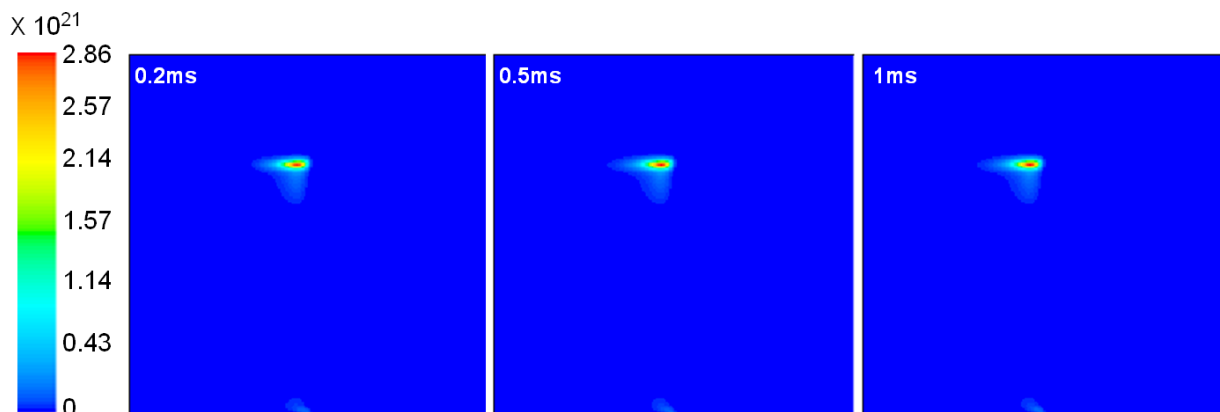


Figure III.19 : Cartographies de la concentration O en m^{-3}

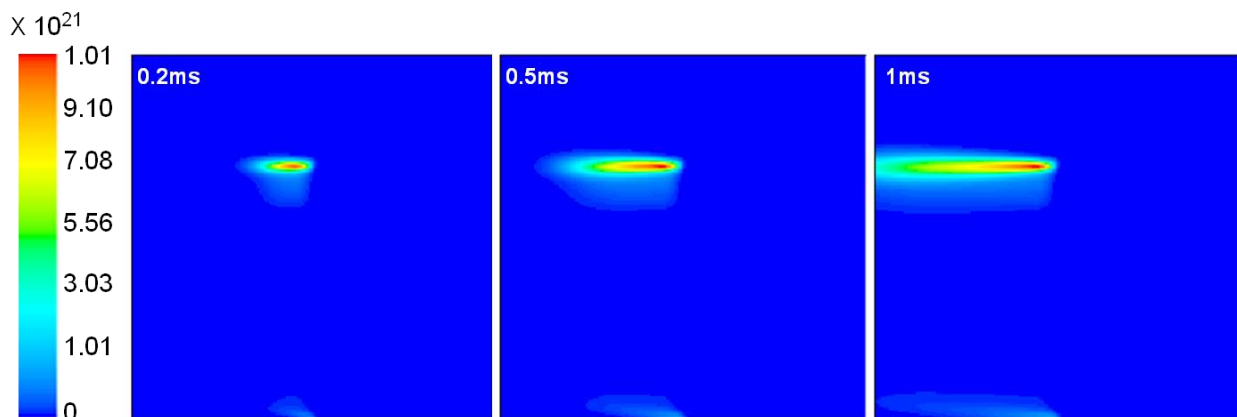


Figure III.20 : Cartographies de la concentration O_3 en m^{-3}

Flux vertical

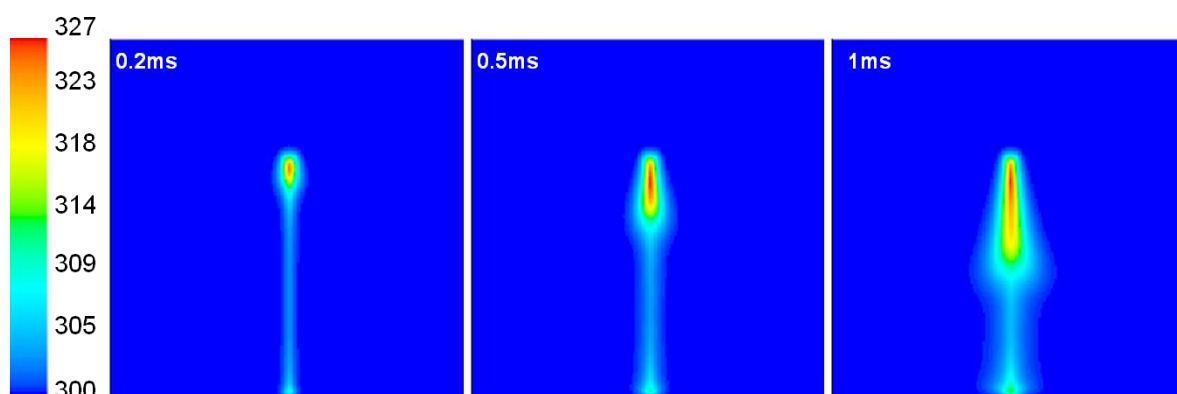


Figure III.21 : Cartographies de la température du gaz en K

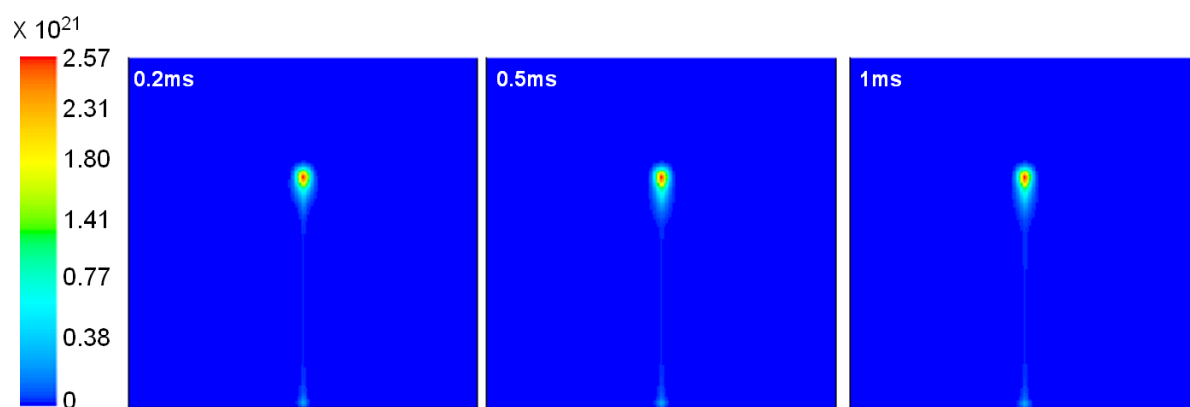


Figure III.22 : Cartographies de la concentration de O en m^{-3}

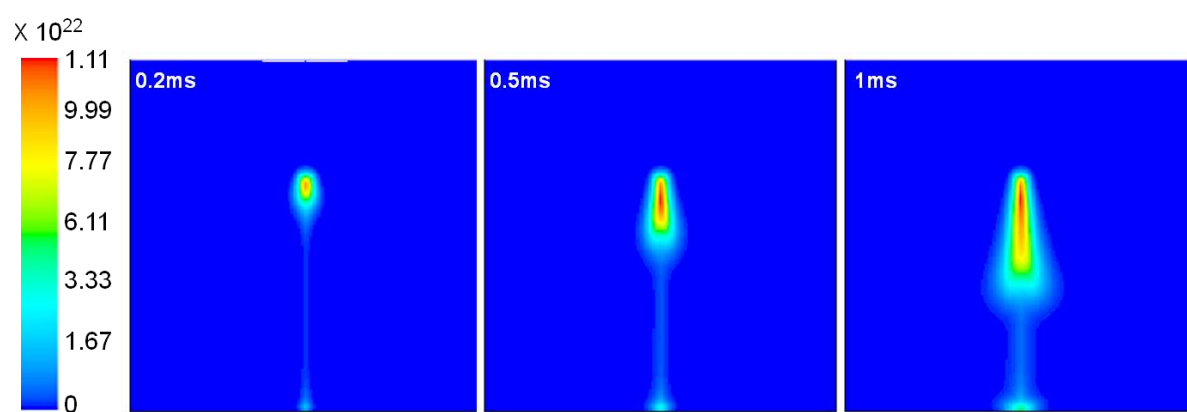


Figure III.23 : Cartographies de la concentration de O_3 en m^{-3}

Les figures III.24 et III.25 montrent l'évolution temporelle des concentrations maximales de l'oxygène atomique et de l'ozone dans le cas d'un écoulement latéral. Ces concentrations maximales sont localisées sur la pointe dans les cartographies précédentes. La courbe III.24 montre très clairement l'alternance entre les phases de décharge qui durent 150ns et qui correspondent à la création quasi-instantanée du radical O (front de montée quasi vertical sur l'échelle de temps de la figure III.24) et les phases de post-décharge où la concentration diminue linéairement durant 0,1ms jusqu'à tendre vers zéro (en fait la concentration diminue d'un facteur 100 et passe d'un ordre de grandeur de 10^{23} m^{-3} à 10^{21} m^{-3} , valeur qui n'est pas visible avec l'échelle linéaire choisie). Au cours des dix décharges successives, on observe une accumulation légère du radical O sur la pointe. A chaque décharge, le canal d'injection est réensemencé en radicaux avec une valeur maximale de la densité de O qui culmine à une valeur identique de $1,6 \cdot 10^{23} \text{ m}^{-3}$. Entre deux phases successives de décharge (c'est-à-dire durant chaque phase de post-décharge), le radical O est quasiment consommé pour la production d'ozone et sa concentration chute jusqu'à une valeur de l'ordre de 10^{21} m^{-3} . La figure III.25 montre que l'ozone s'accumule sur la pointe au fur et à mesure du passage des décharges et tend vers une valeur stationnaire de l'ordre de 10^{22} m^{-3} .

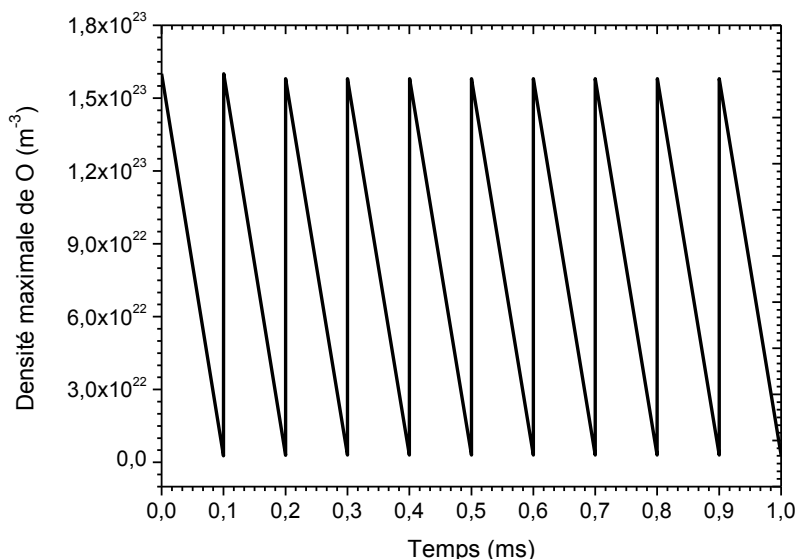


Figure III.24 : Evolution de la concentration maximale d'atomes O sur la pointe entre 0 et 1ms.

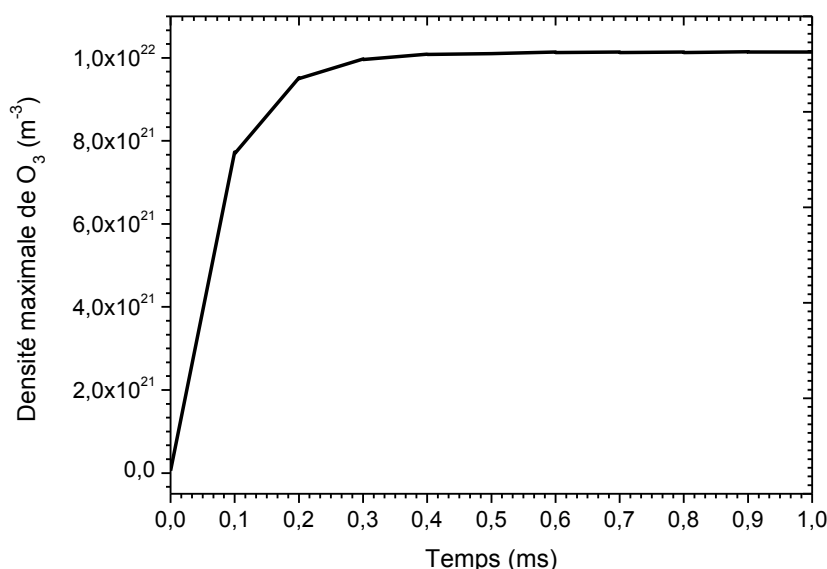


Figure III.25 : Evolution de la concentration maximale d’ozone sur la pointe entre 0 et 1ms

III.3.3 Influence du régime d’écoulement

Le choix du régime d’écoulement (laminaire ou turbulent) n’a aucune influence sur les résultats obtenus en phase de décharge car cette dernière est trop courte par rapport aux échelles de temps des phénomènes mis en jeux. Par contre, il peut avoir une influence au cours des phases de post-décharge.

Dans l’hypothèse laminaire, l’utilisation du terme source d’énergie (III.6) conduit à une température sur la pointe supérieure à 2000 K à la fin de la phase de décharge, c’est-à-dire au bout de 150 ns. Le couplage de la phase de décharge avec la dynamique du gaz, montre que le choc thermique induit une onde de pression (Kacem 2010) qui dissipe en volume une partie de l’énergie thermique accumulée autour de la pointe. Dès 300 ns, la température sur la pointe a chuté de moitié et se stabilise autour de 1200 K. Le logiciel FLUENT n’est pas en mesure de simuler la génération de l’onde de pression compte tenu de la taille des mailles choisie ($50 \mu m \times 50 \mu m$). De ce fait, l’énergie déposée par le terme source (III.6) s’accumule autour de la pointe durant toute la durée de la décharge. Cette concentration d’énergie induit une

augmentation très importante de la vitesse locale du gaz qui dépasse 6000 m.s^{-1} . Le choc thermique perturbe le flux initial de champ de vitesse sans générer d'ondes de pression. Ceci redistribue la concentration des espèces dans le mélange puisque l'inhomogénéité de la température induit une inhomogénéité de concentration (phénomène de thermo-diffusion) ce qui conduit à l'apparition de zones de recirculation (tourbillons) autour de la pointe. Le début de ce phénomène est visible sur la figure III.26a qui montre le champ de température obtenu avec le terme source (III.6) à la fin de la première phase de post décharge dans le cas d'un régime d'écoulement laminaire. Toutefois, les très fortes valeurs locales de vitesse conduisent à un nombre de Reynolds autour de la pointe dépassant 20000. Ceci indique, d'après le rappel donné dans le paragraphe II.5.1 du chapitre II, que l'écoulement doit être considéré comme turbulent. Nous allons tester deux modèles de turbulence, le modèle $k-\varepsilon$ standard et le modèle RNG $k-\varepsilon$ qui impliquent la prise en compte de termes de turbulence dans les équations de conservation (équations II.20, II.21).

Les champs de température obtenus à la fin de la phase post décharge ($t = 0,1 \text{ ms}$) avec les deux représentations du régime turbulent sont indiqués sur la figure III.26 (b et c) et sont très différents entre eux et avec les résultats obtenus dans l'hypothèse laminaire. Nous remarquons aussi que les zones de recirculation n'apparaissent pas et que la diffusion de l'énergie à la pointe est plus isotrope, malgré la présence de l'écoulement.

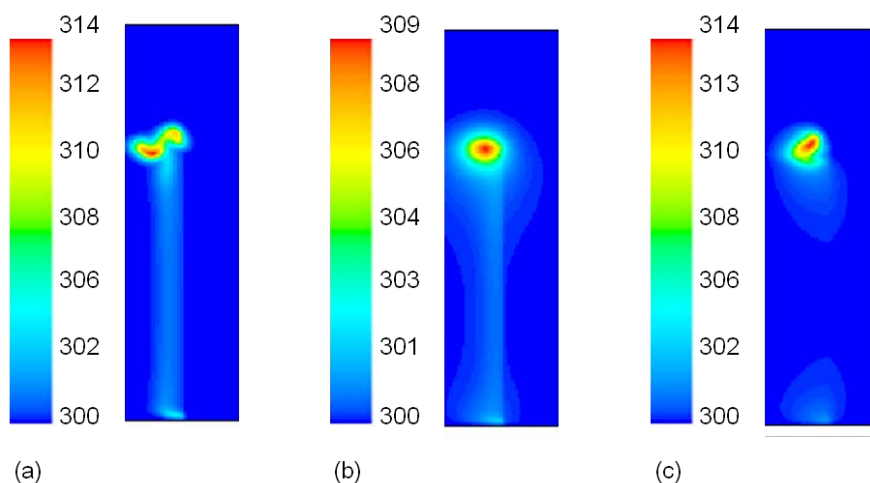


Figure III.26 : Zoom de l'évolution spatiale de la température en fonction du régime d'écoulement à l'instant $t = 0,1 \text{ ms}$. (a) Laminaire, (b) turbulent $k-\varepsilon$ standard et (c) turbulent RNG $k-\varepsilon$.

Toutefois, dans notre étude nous avons choisi de prendre en compte l'accumulation de l'énergie thermique après le passage de l'onde de pression, en utilisant l'expression (III.9). Cela permet de ne pas surévaluer les effets thermiques autour de la pointe. Une autre étude comparative entre les trois régimes d'écoulement a été faite en prenant en compte le terme source énergétique (III.9). Cette étude a montré un très bon accord entre les résultats du régime laminaire et RNG k- ϵ mais une diffusion importante et isotrope dans le modèle k- ϵ standard.

Cette étude nous a permis de conforter notre choix d'utiliser un régime d'écoulement laminaire en y intégrant les termes sources d'énergie (III.9), obtenus après le passage de l'onde de pression. De plus, l'utilisation du régime laminaire permet de faire abstraction des équations du régime turbulent, fortes consommatrices de temps CPU et donc de minimiser la durée des calculs.

IV. Conclusion

Ce chapitre nous a permis en premier lieu de valider les capacités du code FLUENT à simuler l'injection locale des termes sources de décharge électrique en régime fortement instationnaire. La validation a été faite en comparant les profils de température et de densité obtenus par FLUENT et par le modèle complet de la décharge. Ensuite, nous avons étudié les effets du couplage entre les décharges électriques et la dynamique du gaz avec et sans écoulement dans le cas d'un réacteur mono-pointe plan. Les calculs ont été réalisés jusqu'à 1ms c'est-à-dire jusqu'à 10 cycles décharge/post-décharge. Les résultats montrent que, pour nos conditions de simulation, les effets de transfert de quantité de mouvement sont négligeables. En présence d'un écoulement, des panaches de température et de densité se forment à partir de la pointe et dans le sens de l'écoulement. Les résultats ont également montré la faible influence de la relaxation de l'énergie vibrationnelle sur la montée en température du gaz (~ 4 K dans et au voisinage du canal ionisé).

L'analyse de la cinétique chimique nous a permis de déterminer les réactions responsables de la production d'ozone et des oxydes d'azote NO et NO₂. Nous avons remarqué qu'à la fin de la phase post décharge le métastable O₂(a¹Δg) est la seule molécule métastable qui présente

une concentration importante à la pointe, les métastables de N_2 ayant été totalement consommés.

Enfin, une étude comparative a été effectuée sur le régime d'écoulement dans le but de valider l'emploi d'un régime d'écoulement laminaire. Cette hypothèse s'est révélée acceptable à la condition que les termes source d'injection d'énergie soient estimés après le passage de l'onde de pression générée par les chocs thermiques à la pointe.

Dans le chapitre suivant nous allons étudier l'effet du nombre des pointes sur:

- la production d'ozone
- la dépollution d'un gaz d'échappement test traité par décharges couronnes

Le nombre de pointes sera étendu jusqu'à 10 et la durée des simulations jusqu'à 10ms.

Chapitre IV : Simulation 2D de la production d’ozone et du traitement des oxydes d’azote dans un réacteur multi pointes-plan

I. Introduction	123
II. Conditions de simulation.....	124
III. Etude de la production d’ozone par décharge couronne multi-pointes.....	126
III.1 Introduction.....	126
III.2 Cas d’un réacteur multi-pointes – plan traversé par un écoulement transversal de 5m.s^{-1}	127
III.2.1 Production d’ozone et variation de la température du gaz.....	127
III.2.2 Formation des oxydes d’azote NO et NO ₂	131
III.2.3 Effet de l’augmentation du nombre des pointes.....	134
III.3 Influence de l’orientation et de la vitesse d’écoulement sur la production d’ozone	136
IV. Etude de la dépollution d’un effluent gazeux initialement pollué par 400ppm de NO	140
IV.1 Introduction.....	140
IV.2 Etude sur un temps de traitement de 1ms	141
IV.3 Etude sur un temps de traitement de 10ms (100 décharges).....	146
V. Conclusion	153

Chapitre IV. : Simulation 2D de la production d’ozone et du traitement des oxydes d’azote dans un réacteur multi pointe-plan

I. Introduction

L’objectif de ce chapitre consiste à étudier la production d’ozone par décharge couronne dans l’air synthétique puis la dépollution d’un gaz d’échappement test à savoir de l’air initialement pollué par 400 ppm de monoxyde d’azote « NO ».

L’intérêt de ce chapitre réside dans l’utilisation de la simulation pour mener des études paramétriques et comprendre finement leur influence sur la cinétique réactionnelle du mélange. Les études porteront sur l’influence du nombre de pointes mises sous tension, de la durée du traitement et de la vitesse et la direction de l’écoulement.

Les premières études seront d’abord réalisées pour une durée physique de 1ms correspond à l’injection de 10 phases de décharges. Elles seront ensuite étendues à une durée physique de 10ms, soit l’équivalent de 100 phases de décharges, dans le cas du traitement des NO_x.

Ce chapitre se compose de trois parties. La première présente les conditions de simulation et les hypothèses de calcul. La seconde se rapporte à l’étude de la production d’ozone par un réacteur multi-pointes plan. Le nombre de pointes sera augmenté jusqu’à 4 et l’influence de la vitesse et de la direction d’écoulement sera analysée. La troisième partie est consacrée au traitement des NO_x par décharges couronnes. La durée de simulation sera étendue jusqu’à 10ms avec un réacteur de 10 pointes maximum.

II. Conditions de simulation

Les conditions de simulation utilisées dans ce chapitre sont quasiment identiques à celles de la modélisation d'une décharge mono pointe-plan décrites dans le chapitre précédent. Les conditions expérimentales ainsi que la réactivité et les données de base, décrites dans les paragraphes II.1 et II.2 du chapitre III, sont reprises ici avec, toutefois, une extension du nombre de pointes et un mélange de gaz pouvant inclure une faible proportion initiale d'oxyde d'azote (400ppm de NO). Le domaine de calcul est un rectangle de hauteur 1cm et de largeur allant de 2cm à 5,5cm. Ce domaine représente une zone réduite d'un réacteur corona multi-pointes plan. Les pointes sont espacées de 5mm les unes des autres et la distance inter-électrode est de 7mm. Le nombre de pointes pris en considération varie de 1 à 10 et une tension continue de 7,2kV est appliquée sur chacune d'entre elles. Le domaine d'étude est traversé par un écoulement permanent de gaz transversal ou vertical de 5m.s^{-1} à la pression atmosphérique et à une température de 300K. La figure IV.1 montre un exemple de la géométrie d'étude dans le cas d'une conduite de 2cm de longueur.

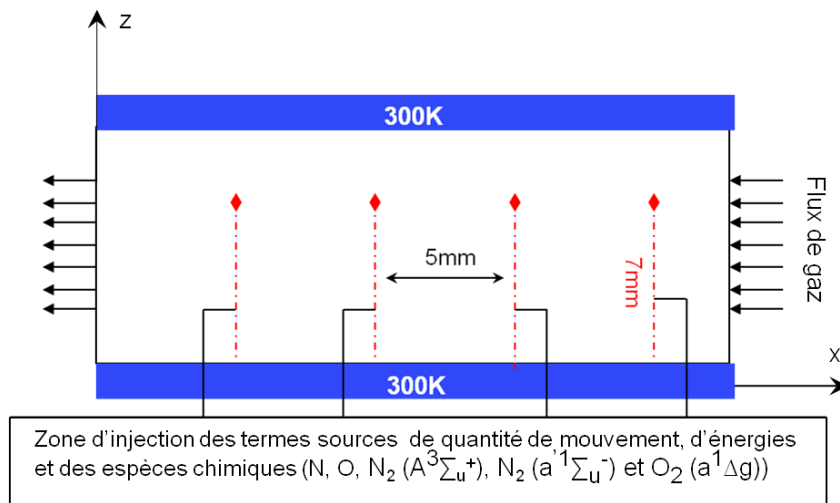


Figure IV.1: Schéma du domaine 2D utilisé pour la simulation d'un réacteur multi pointes-plan

Les conditions aux limites restent inchangées. Aux parois du domaine de calcul, nous avons défini une condition de type «wall» avec une température constante de 300 K et la condition d'adhérence aux parois est imposée. Les décharges sont simulées par l'injection, à l'intérieur des canaux mono-filamentaires de $50\mu\text{m}$, des différents termes sources de quantité de

mouvement, d’énergie et d’espèces chimiques (voir le paragraphe II.4 du chapitre III). Les termes sources sont injectés durant 150ns à chaque phase de décharge et périodiquement toutes les 0,1ms. Cette durée modélise la période moyenne de répétition naturelle des décharges (10kHz). Les espèces chimiques injectées durant la phase de décharge sont au nombre de 5 (les atomes N et O, et les molécules excitées $N_2 (A^3\Sigma_u^+)$, $N_2 (a^1\Sigma_u^-)$ et $O_2 (a^1\Delta_g)$). La réactivité du mélange prend en compte 10 espèces chimiques neutres (N, O, O_3 , NO_2 , NO, O_2 , N_2 , $N_2 (A^3\Sigma_u^+)$, $N_2 (a^1\Sigma_u^-)$ et $O_2 (a^1\Delta_g)$) réagissant selon 23 réactions sélectionnées (voir annexe A). Les 10 espèces et les 23 réactions ont été sélectionnées selon leur importance relative sur la production d’ozone et la destruction de monoxyde d’azote durant la phase de post décharge. Le tableau IV.1 résume les conditions de simulation utilisées dans ce chapitre

Pression	101325 Pa
Température du gaz	300 K
Vitesse d’écoulement	5 m.s ⁻¹ ou 10 m.s ⁻¹
Mélange de gaz	80% N ₂ + 20% O ₂ + (0 ou 400 ppm de NO)
Réactivité	10 espèces et 23 réactions
Tension appliquée	7,2k V DC
Fréquence de répétition des décharges	10 kHz
Durée d’une décharge	150 ns
Distance inter-électrodes	7 mm
Nombre de pointes	1 à 10
Distance inter-pointes	5 mm

Tableau IV.1: Résumé des conditions de simulation

Deux études spécifiques ont été menées. La première concerne la production d’ozone dans l’air synthétique et la seconde le traitement d’une faible proportion de monoxyde d’azote présent initialement dans un mélange d’air synthétique. Avant d’analyser les résultats obtenus,

les cartographies de la figure IV.2 montrent les profils spatiaux de la température du gaz et de l’oxygène atomique à la fin de la première phase de décharge ($t = 150\text{ns}$) lorsque la haute tension continue est appliquée sur quatre pointes dans les conditions décrites sur la figure IV.1 avec un écoulement latéral de 5m.s^{-1} . Comme on pouvait s’y attendre, la température et la densité de l’oxygène atomique restent confinées à l’intérieur des zones mono filamentaires d’injection. A la fin de la phase de décharge, nous n’observons pas d’effet de l’écoulement sur les profils. Les effets de la diffusion massique et thermique sont toutefois visibles au niveau de chacune des pointes. On peut noter que les profils des espèces injectées et de la température entre chaque pointe et le plan sont rigoureusement identiques aux profils obtenus dans le cas des études mono-pointe (voir le § III.1.1 du chapitre III).

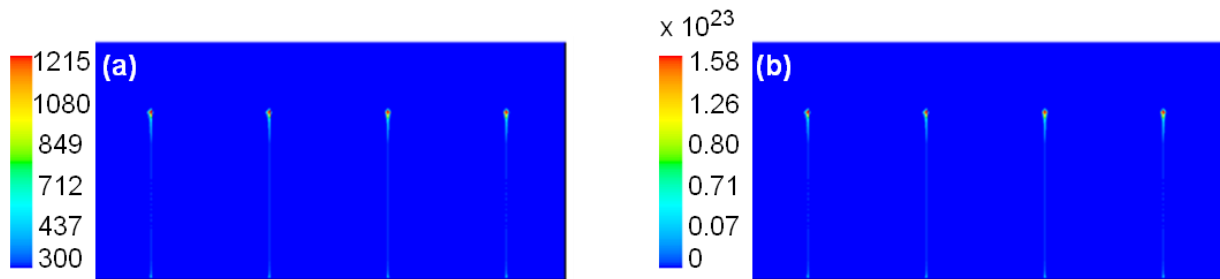


Figure IV.2: Cartographies 2D de, (a) la température du gaz en K et (b) la concentration en oxygène atomique en m^{-3} , à la fin de la phase de décharge ($t = 150\text{ns}$).

III. Etude de la production d’ozone par décharge couronne multi-pointes

III.1 Introduction

L’ozone est l’une des espèces les plus stables de l’oxygène. Il a été observé pour la première fois par le Hollandais Martin Von Marum en 1785 qui l’a nommé ozone en faisant référence à la signification grecque « exalter une odeur » (Wikipédia). En 1845, l’ozone a été défini pour la première fois comme étant l’une des formes de l’oxygène, en confirmant expérimentalement les résultats de Von Marum, concernant la possibilité de produire l’ozone par une décharge électrique appliquée à un mélange d’oxygène. En 1857, W. Von Siemens (Siemens 1857) a pu construire le premier ozoneur basé sur une décharge électrique dans un tube technique encore employée de nos jours. L’ozone est utilisé dans différents domaines

comme, le traitement des eaux potables et des eaux usées (la désodorisation, la désinfection, etc.), le traitement de l’air et la synthèse chimique (Peyrous 1986). Pour le traitement de l’eau, la décharge électrique peut être générée soit directement dans l’eau, soit dans l’air (souvent enrichi de molécules d’oxygène) ou au dessus de la surface de l’eau. Dans tous les cas, les décharges électriques utilisées pour la production d’ozone (telles que les DBD ou les décharges couronnes) forment des plasmas hors d’équilibre de type streamer à la pression atmosphérique. La génération d’ozone pour le traitement de l’eau a conduit à de nombreuses recherches depuis l’invention de Siemens (Siemens 1857). Récemment, les travaux du groupe (Eichwald 2008) et de Ono (Ono 2003) ont montré l’importance des secondary streamers dans la production d’ozone par décharge couronne notamment à cause du fort taux de production des radicaux O dans le canal du secondary streamer.

Dans ce paragraphe, nous allons étudier la production d’ozone par un réacteur multi-pointes (dont le nombre pourra varier de 2 à 4) et sur une durée de calcul allant jusqu’à 1ms (soit la prise en compte de 10 phases successives de décharge). Dans le paragraphe III.2, une première étude sera réalisée sur un réacteur bi pointes-plan en régime d’écoulement transversal. L’orientation de l’écoulement et le nombre de pointes seront ensuite des paramètres d’étude sur l’efficacité de la production d’ozone.

III.2 Cas d’un réacteur multi-pointes – plan traversé par un écoulement transversal de 5m.s^{-1}

Dans cette partie, nous allons tout d’abord étudier la production d’ozone dans un réacteur composé de deux pointes. Les décharges activent un flux d’air synthétique de vitesse transversale uniforme de 5 m.s^{-1} . Les décharges durent 150 ns et apparaissent périodiquement chaque 0,1 ms. Ensuite, nous étendrons notre étude à un réacteur composé de 4 pointes identiques à celui de la figure IV.1.

III.2.1 Production d’ozone et variation de la température du gaz

Les figures IV.3 et IV.4 montrent l’évolution spatiotemporelle de la température du gaz et l’évolution de la valeur moyenne de cette température dans tout le volume sur une échelle de

temps de 1ms correspondant à 10 pulses de décharges lorsque une haute tension positive est appliquée sur deux pointes. Les différentes cartographies de la figure IV.3 montrent que la température du gaz a quasiment relaxé à la fin de chaque phase de post-décharge. La température du gaz augmente de 32 K dans le panache latéral au voisinage des pointes et de quelques degrés uniquement dans le volume, ce qui explique l'augmentation très faible (moins de 1 K) de la température moyenne (voir figure IV.4). A la fin de chaque phase post décharge, la température s'accumule au niveau de la pointe. A partir de 0,8 ms, qui correspond à la fin de la huitième phase de post décharge, on observe une augmentation locale de température au niveau de la deuxième pointe à cause de l'accumulation d'énergie due aux précédentes décharges et à l'effet de l'écoulement qui transporte l'énergie déposée par la première décharge jusqu'à la zone d'injection de la seconde. Au bout de dix périodes de « décharge / post décharge », l'accumulation d'énergie conduit à une augmentation globale de la température dans une zone de 7 mm × 1 cm dont la frontière droite est alignée avec l'axe de la première pointe.

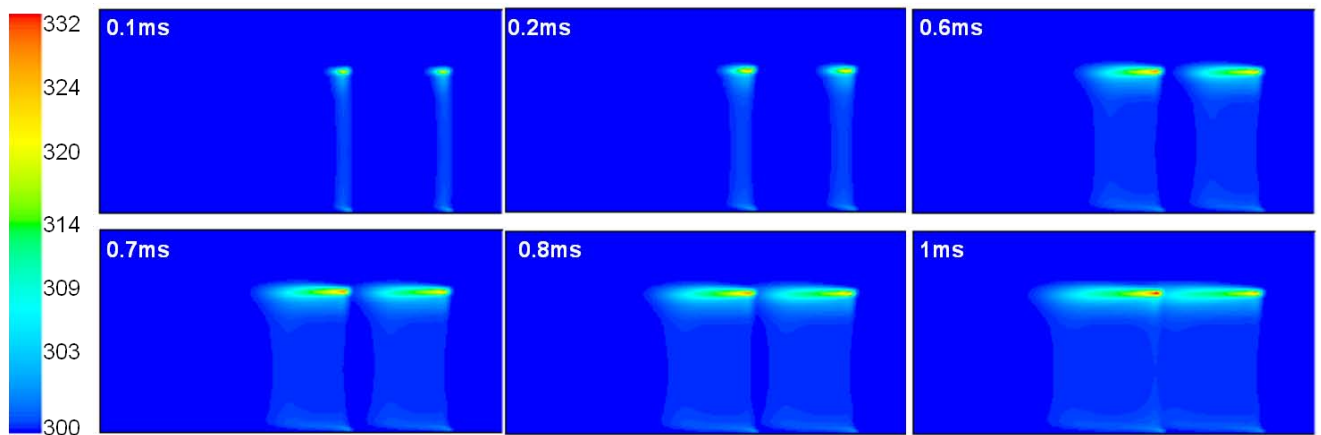


Figure IV.3 : Evolution spatiotemporelle de la température en K (domaine de 1 cm × 2 cm)

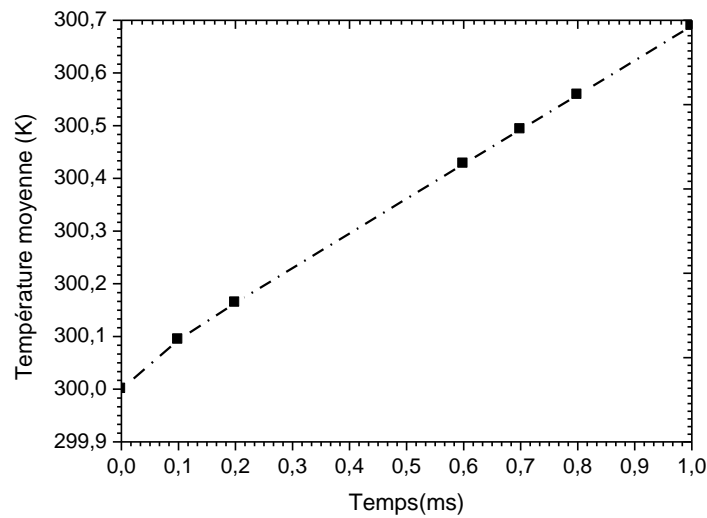


Figure IV.4 : Température moyenne intégrée sur tout le domaine (1 cm x 2 cm) (cas de deux pointes)

La figure IV.5 montre l'évolution de la densité d'ozone. On remarque qu'il est formé principalement à la pointe, dans la zone d'expansion du secondary streamer là où la production du radical O est la plus efficace. En effet, durant chaque phase de post décharge, l'oxygène atomique est consommé pour former l'ozone par les réactions à 3 corps $O + O_2 + M \rightarrow O_3 + M$ ($M = O_2, N_2$). L'ozone s'accumule ainsi au voisinage des pointes et est transporté dans le flux de gaz ce qui conduit à l'extension d'un panache de concentration d'ozone visible sur les figures IV.5. A la fin de la première phase post décharge, la densité maximale d'ozone atteint $8,14 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ autour de la pointe et sa densité sur l'axe est de l'ordre de 10^{20} m^{-3} (non visible sur les figures IV.5 à cause du choix des échelles). La concentration d'ozone augmente progressivement dans tout le volume du réacteur grâce aux phénomènes de diffusion et de transport convectif. Au bout de dix décharges successives, l'accumulation d'ozone augmente au niveau de la pointe et sa densité atteint une valeur maximale de $1,25 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ à 1 ms. Ceci correspond à une augmentation locale de la concentration d'ozone d'un facteur 1,54 entre la fin de la première et la dixième post décharge, et une augmentation d'un facteur 12 concernant la densité moyenne d'ozone (voir figure IV.6). La figure IV.7 décrit l'évolution temporelle de la densité maximale d'ozone (localisée au niveau de la seconde pointe). Cette densité maximale augmente rapidement entre 0,1 ms et 0,4 ms puis elle sature dans le réacteur

et n'augmente quasiment plus jusqu'à l'instant 0,8 ms ou une nouvelle augmentation commence à apparaître à cause de l'accumulation des densités issues de la première décharge sur la seconde. Cette figure montre que jusqu'à l'instant 0,8 ms, la variation de la densité maximale d'ozone suit celle de l'évolution d'une décharge mono pointe (voir la figure III.25 du chapitre III). Ensuite, l'interaction entre les deux pointes conduit à une nouvelle augmentation de la densité maximale.

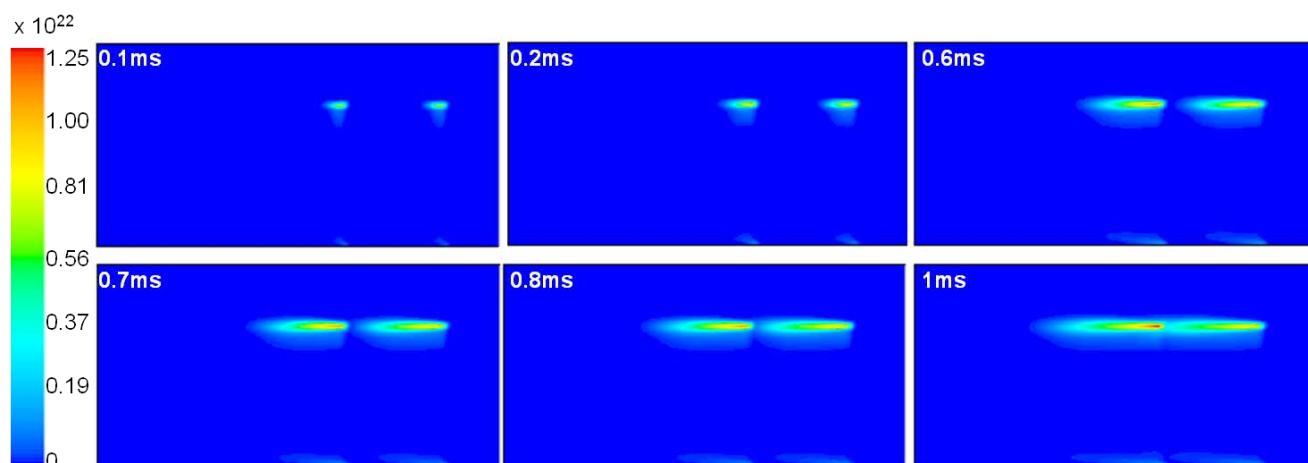


Figure IV.5 : Evolution spatiotemporelle de la densité d'ozone en m^{-3} (domaine de 1 cm x 2 cm)

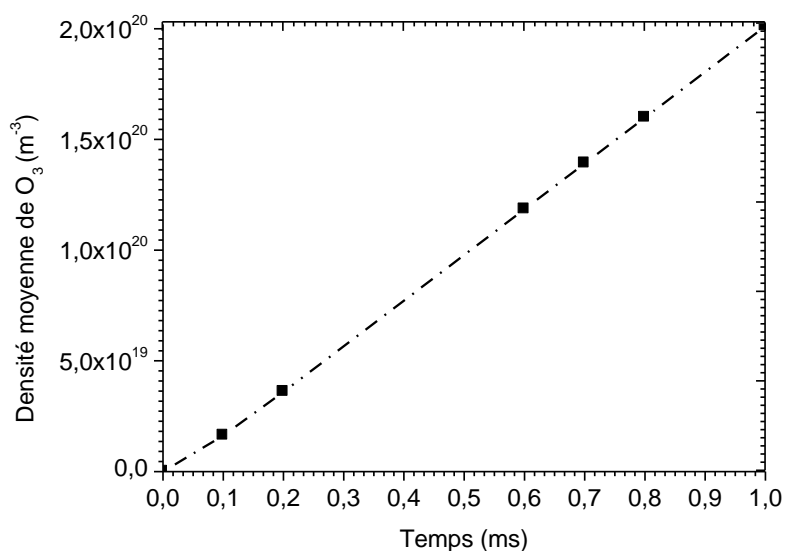


Figure IV.6 : Densité moyenne de O_3 intégrée sur tout le domaine (1 cm x 2 cm) (cas de deux pointes)

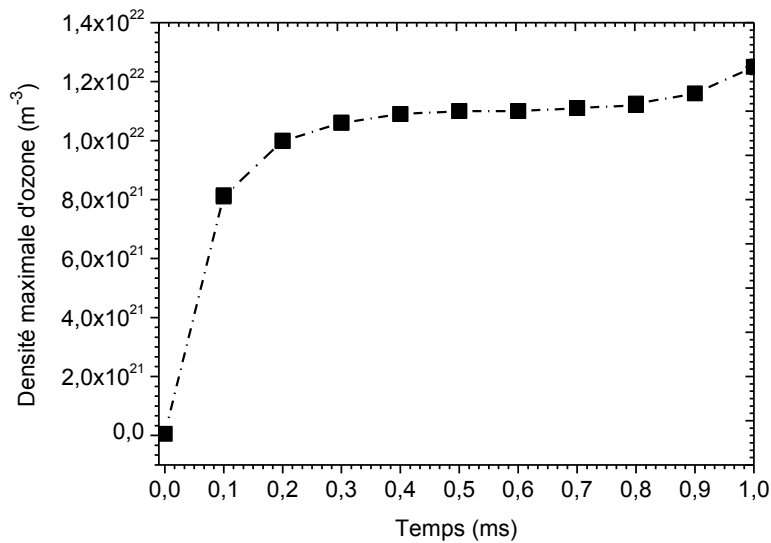


Figure IV.7 : Evolution temporelle de la densité maximale d'ozone en présence de deux pointes.

Finalement, une forte corrélation est observée, à chaque instant, entre les cartographies de l'évolution de la densité d'ozone et celles de l'évolution de la température du gaz. Cette corrélation s'explique par l'efficacité de la production d'ozone par les réactions à trois corps qui varient en $1/T^{2,3}$.

III.2.2 Formation des oxydes d'azote NO et NO₂

Bien qu'il n'y ait pas d'oxydes d'azote présents initialement dans le mélange, l'injection périodique d'atomes d'azote et d'oxygène lors des phases de décharge entraîne irrémédiablement à la formation de ces polluants. Le monoxyde d'azote NO est un gaz toxique incolore, inodore et insoluble dans l'eau. Par contre, le dioxyde d'azote NO₂ présente une coloration brunâtre et une odeur douceâtre : c'est une des odeurs que l'on perçoit notamment dans les rues polluées par la circulation automobile.

Les figures IV.8 et IV.9 présentent l'évolution spatiotemporelle de la densité du monoxyde et du dioxyde d'azote à la fin de la première, deuxième, huitième et dixième phases de post décharge. Les panaches de concentration qui naissent à partir des pointes du fait de

l'écoulement latéral s'étendent avec le temps et entrent progressivement en interaction. Ces interactions commencent à partir de 0,8 ms dans les conditions d'un flux d'air de 5 m.s^{-1} et d'une distance inter-pointes de 5 mm. Les oxydes d'azote sont formés en faible concentration par rapport à celle de l'ozone. Dans la chaîne de réactions principales, le dioxyde d'azote NO_2 est formé principalement par l'interaction du radical secondaire O_3 avec le monoxyde d'azote NO , lui-même produit à partir des radicaux primaires O et N . Les réactions prédominantes durant les phases de décharge sont les réactions à trois corps $\text{O}+\text{N}+\text{M}\rightarrow\text{NO}+\text{M}$ (réaction 3 de l'annexe A) et $\text{O}+\text{NO}+\text{M}\rightarrow\text{NO}_2+\text{M}$ (réaction 4 de l'annexe A), suivies durant les phases de post-décharge par la réaction $\text{O}_3+\text{NO}\rightarrow\text{NO}_2+\text{N}_2$ (réaction 5 de l'annexe A). Dans les premiers instants de chaque phase de décharge, la réaction 3 forme des monoxydes d'azote uniquement dans le canal ionisé, là où se concentrent les radicaux O et N . A la fin de la première phase de post décharge, la densité de monoxyde d'azote sur l'axe est en moyenne de $3 \cdot 10^{15} \text{ m}^{-3}$ et atteint au niveau de la pointe $7.45 \cdot 10^{17} \text{ m}^{-3}$. Dès que la concentration de NO devient suffisante dans le canal ionisé, sa production par la réaction 3 rentre en compétition avec sa destruction par la réaction 4 pour former du dioxyde d'azote NO_2 . Comme la production de NO_2 dépend également de la concentration du radical O , la concentration de NO_2 est tout d'abord localisée dans le canal ionisé où elle atteint un maximum de $5.74 \cdot 10^{15} \text{ m}^{-3}$ à la fin de la première phase de post-décharge.

Pour résumer, le monoxyde d'azote NO est créé à chaque phase de décharge dans le canal ionisé en proportion plus importante au voisinage des pointes à cause de la forte concentration du radical O à ces endroits. Il est ensuite transporté dans le volume du gaz par le flux convectif, ce qui engendre un panache de concentration qui s'étend à partir de chaque pointe. Toutefois, dans ce panache, la concentration de NO reste maximum au voisinage des pointes, ce qui donne une similitude visuelle entre les cartographies de température et de densité de NO .

Cette similitude n'est pas vérifiée pour la densité de NO_2 , puisque la zone de forte concentration à l'intérieur du panache de densité est clairement décalée à gauche de chaque pointe (voir les figures IV.9 à 0,8 et 1 ms). En effet, le dioxyde d'azote NO_2 est formé durant les phases de post-décharge par la réaction 5 ($\text{O}_3+\text{NO}\rightarrow\text{NO}_2+\text{N}_2$), c'est-à-dire aux endroits où les concentrations de O_3 et de NO sont les plus élevées. Cependant, à chaque phase de

décharge, NO_2 est en partie consommé aux voisinages des pointes pour former du NO par la réaction 6 ($\text{O} + \text{NO}_2 \rightarrow \text{NO} + \text{O}_2$) qui fait intervenir le radical primaire O . Ceci explique que la concentration de NO_2 soit plus faible au voisinage des pointes que dans l'ensemble du panache de concentration.

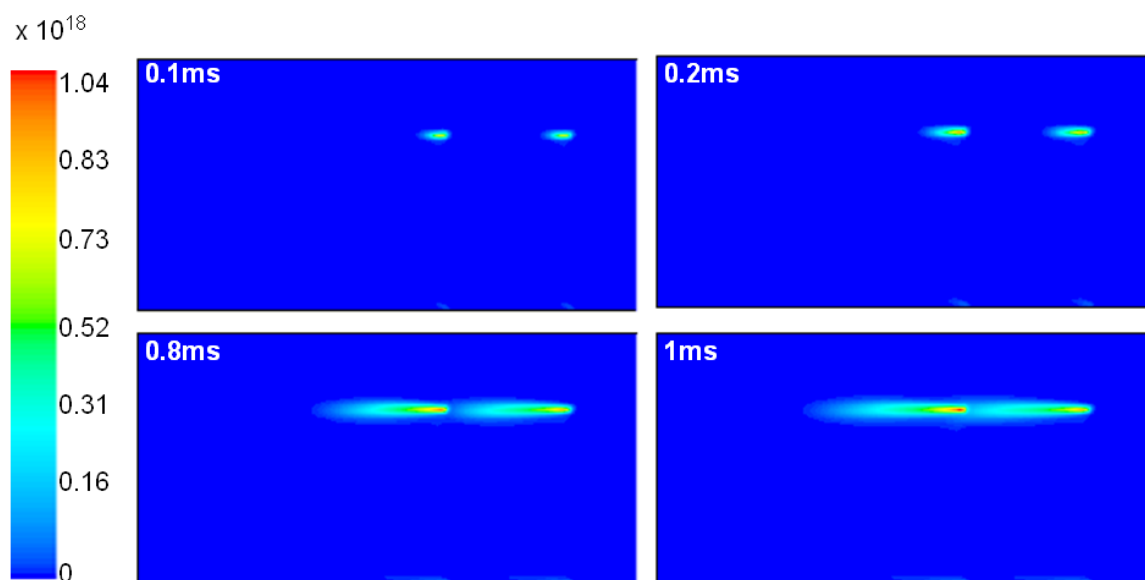


Figure IV.8 : Evolution spatiotemporelle de la densité de NO en m^{-3} (domaine de $1 \text{ cm} \times 2 \text{ cm}$)

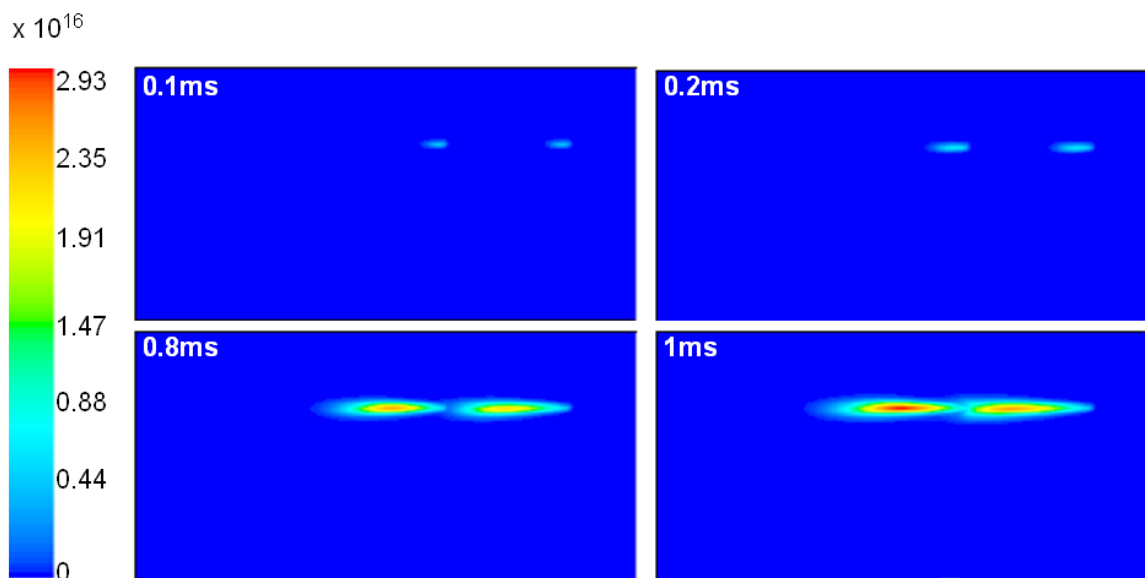


Figure IV.9 : Evolution spatiotemporelle de la densité de NO_2 en m^{-3} (domaine de $1 \text{ cm} \times 2 \text{ cm}$)

III.2.3 Effet de l’augmentation du nombre des pointes

Dans ce paragraphe, nous allons étudier l’effet du nombre de pointes sur la production d’ozone. Pour cela, nous rajoutons deux autres décharges espacées de 5 mm l’une de l’autre dans la même géométrie que celle utilisée précédemment. La figure IV.10 présente les cartographies de la température et de la densité d’ozone à l’instant 1ms, après la fin de la dixième phase de post décharge et pour un nombre de pointes variant de 1 à 4.

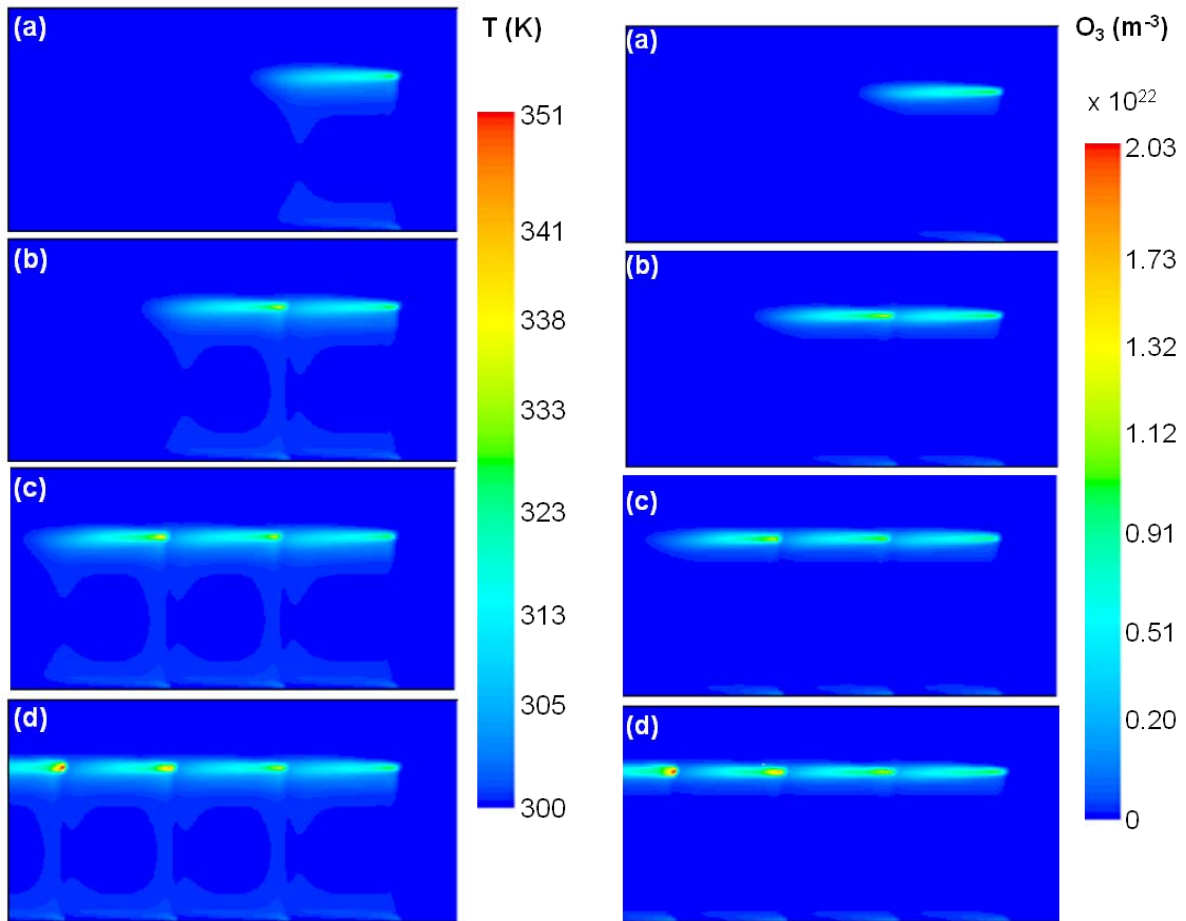


Figure IV.10 : Cartographies de la température du gaz (K) et de la densité d’ozone (m^{-3}) à l’instant $t = 1 \text{ ms}$, après dix périodes décharge / post décharge : (a) une pointe, (b) deux pointes, (c) trois pointes et (d) quatre pointes (vitesse latérale = 5 m.s^{-1}).

Les cartographies de la température et de la densité d’ozone, dans toutes les configurations, sont très proches. En effet, la température du gaz et la population d’ozone sont plus

importantes à proximité des pointes puisque c'est à cet endroit que l'injection d'énergie et la production du radical O sont les plus élevées. Les panaches de température et de concentration d'ozone, issus de l'écoulement, interagissent entre eux dès 0,8ms pour une vitesse d'écoulement de 5 m.s^{-1} . Cette interaction conduit à une augmentation locale de la température du gaz et de la densité d'ozone au voisinage des 2^{ème}, 3^{ème} et 4^{ème} pointes (voir les figures IV.10d). On peut relever que le maximum de température pour le cas d'une mono pointe est de 325 K au bout de 1ms alors qu'il augmente jusqu'à 350K pour le cas de quatre pointes.

Quel que soit le nombre de pointes variant de 1 à 4, on constate que la température moyenne du gaz dans l'ensemble du domaine de calcul est quasi constante. La température moyenne reste plus proche de l'ambiante avec une variation linéaire de 1,4 K en fonction du nombre de pointe comme le montre la figure IV.11. Cette linéarité est également observée pour la production d'ozone mais avec une variation plus importante de sa densité moyenne qui est multipliée par 4 entre les cas mono et quadri pointes (voir la figure IV.12).

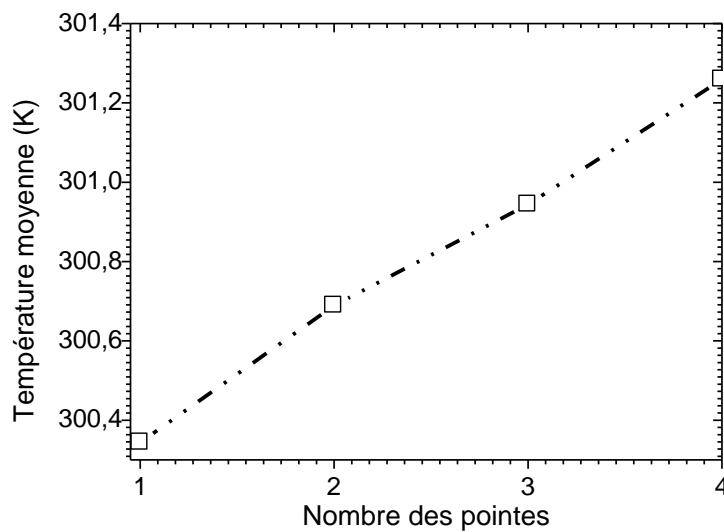


Figure IV.11 : Evolution de la température moyenne du gaz à l'intérieur du domaine de calcul de la figure IV.1 en fonction du nombre de pointes à $t = 1 \text{ ms}$.

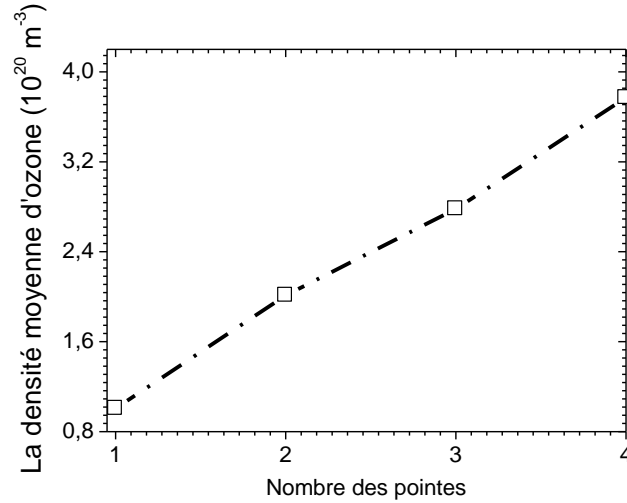


Figure IV.12 : Densité moyenne d'ozone à 1ms en fonction du nombre de pointes.

III.3 Influence de l'orientation et de la vitesse d'écoulement sur la production d'ozone

Dans ce paragraphe, nous étudions les effets de la vitesse d'écoulement (5 m.s^{-1} et 10 m.s^{-1}) et de l'orientation initiale des lignes de courant (l'une transversale comme représentée sur la figure IV.1 et l'autre verticale comme représenté sur la figure IV.13) sur l'efficacité de production de l'ozone au bout d'un temps de simulation de 1ms. Le nombre de pointe est fixé à 4 dans tous les cas de figure.

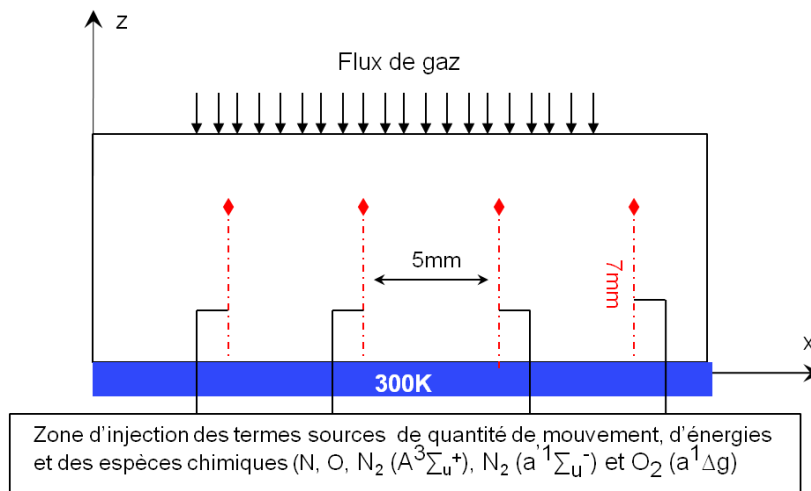


Figure IV.13 : Schéma 2D de la simulation d'un réacteur multi pointes-plan traversé par un écoulement initial vertical.

La figure IV.14 représente les cartographies de la concentration d'ozone au bout de 1ms (c'est-à-dire après 10 phases de post décharge) et pour les deux vitesses d'écoulement transversal. Comme, on pouvait s'y attendre, le transport de l'ozone dans le réacteur est deux fois plus important lorsque la vitesse est de 10 m.s^{-1} (voir la figure IV.14b en comparaison de la figure IV.14a). Pour une vitesse de 10 m.s^{-1} , l'interaction entre les panaches de concentration commence à apparaître à partir de 0,4 ms au lieu de 0,8 ms dans la simulation à 5 m.s^{-1} . Les zones de densité élevées sont plus étendues et moins concentrées au voisinage de la pointe comme dans le cas d'une vitesse de 5 m.s^{-1} . A 1 ms, la densité maximale d'ozone pour 10 m.s^{-1} est deux fois moins importante comparativement au cas 5 m.s^{-1} . En effet, l'ozone est soufflé par le fort écoulement ce qui répartit sa concentration sur une traînée plus longue. Les effets d'accumulation sont de ce fait réduits. Les simulations montrent également que la densité moyenne d'ozone, intégrée sur tout le domaine de calcul, diminue de 19% en passant d'une vitesse d'écoulement de 5 à 10 m.s^{-1} . Le différentiel vient du fait qu'une partie de l'ozone produit dans le réacteur a été transportée en dehors du domaine de simulation.

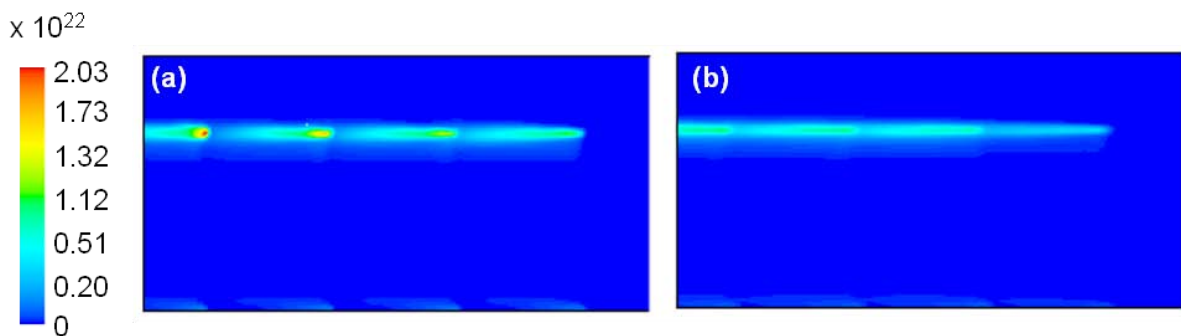


Figure IV.14 : Cartographie de la concentration d'ozone (en m^{-3}) à 1ms pour un flux initial latéral de (a) 5 m.s^{-1} et (b) de 10 m.s^{-1} .

La figure IV.15 représente les cartographies de la concentration d'ozone au bout de 1ms (c'est-à-dire après 10 phases de post décharge) et pour les deux vitesses verticales d'écoulement (voir figure IV.13). Contrairement au cas d'un flux transversal, il n'y a quasiment pas d'interaction entre les traînées de concentration d'ozone. Pour une vitesse de 5 m.s^{-1} , aucune interaction n'est observée au bout de 1ms. Il n'y a donc pas d'accumulation

spécifique d'ozone due à une superposition des panaches de concentration et la densité maximale d'ozone est plus faible que dans le cas d'un flux transversal de même vitesse. Pour une vitesse verticale de 10 m.s^{-1} (voir la figure IV.15b), les traînées d'ozone des 2^{ème} et 3^{ème} pointes traversent les zones d'injection des 1^{ère} et 4^{ème} pointes. Ceci se traduit par une extension du panache de concentration d'ozone vers les bords du domaine. Dans tous les cas, la distribution de la densité d'ozone suit les lignes de courant du champ de vitesse qui transporte l'ozone produit au voisinage des pointes dans l'ensemble du volume du réacteur.

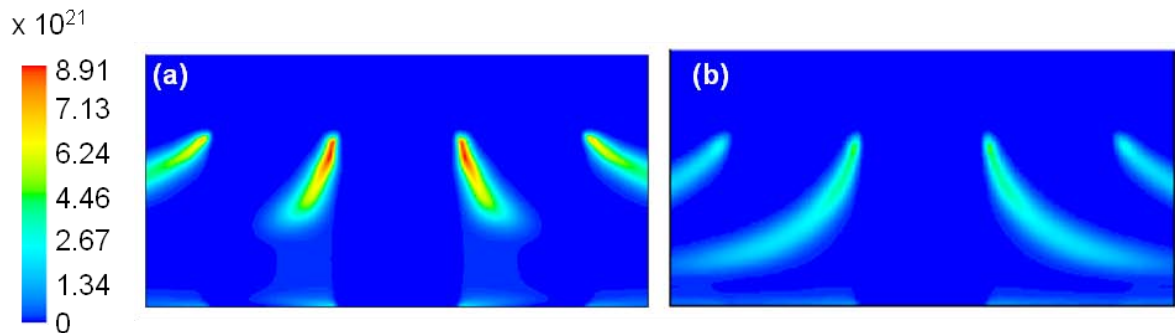


Figure IV.15 : Cartographie 2D de la concentration d'ozone (m^3) à 1ms pour un flux initial vertical de (a) 5m.s^{-1} et (b) de 10m.s^{-1} .

Les figures IV.16 et IV.17 présentent un bilan comparatif de cette étude à la fin de la dixième période décharge / post décharge, c'est-à-dire au bout de 1 ms. On constate que dans nos conditions de simulation, un écoulement vertical conduit à une diminution de la concentration maximale pour les deux vitesses d'écoulement (voir la figure IV.16). En effet, dans le cas d'un flux latéral, les traînées d'ozone se chevauchent ce qui conduit à une augmentation locale de concentration. La densité maximale la plus élevée est obtenue dans le cas d'un flux latéral de 5 m.s^{-1} . Elle atteint dans ces conditions $2 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$. Quelle soit l'orientation du champ de vitesse, la densité maximale est plus faible pour une vitesse initiale de 10m.s^{-1} en comparaison d'une vitesse à 5 m.s^{-1} . Ceci est normal, dans la mesure où un fort champ de vitesse limite les effets d'accumulation. La densité moyenne d'ozone, calculée sur le domaine d'étude, est également plus faible lorsque l'écoulement est vertical. En effet, l'ozone produit est évacué dans le champ de vitesse par les deux bords verticaux, alors que dans le cas d'un flux initial latéral il séjourne plus longtemps dans le réacteur.

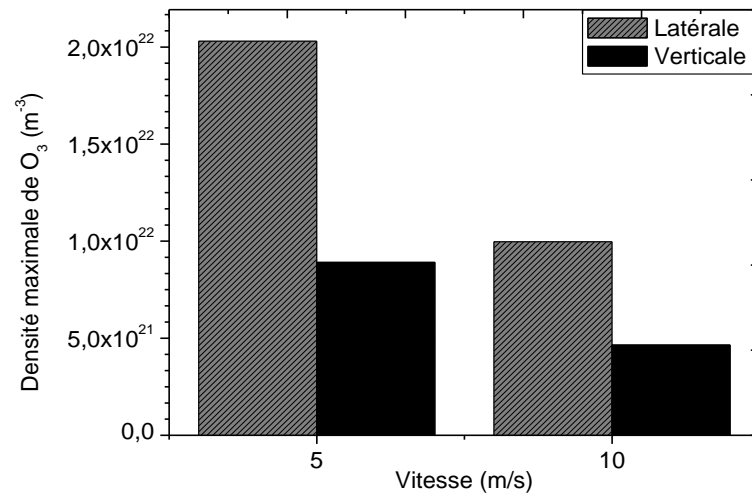


Figure IV.16 : Densité maximale d'ozone en fonction de la vitesse et de l'orientation de l'écoulement

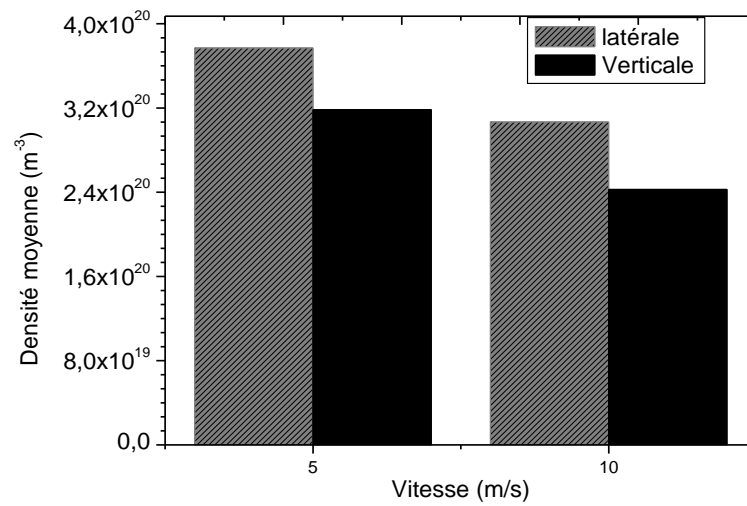


Figure IV.17: Densité moyenne d'ozone en fonction de la vitesse et de l'orientation de l'écoulement

IV. Etude de la dépollution d'un effluent gazeux initialement pollué par 400ppm de NO

IV.1 Introduction

Les principaux effluents gazeux rejetés par les industries (d'incinération d'ordures ménagères, de production d'électricité, etc.) et par les véhicules automobiles (voitures, camions, bateaux, etc.) contiennent différents types de polluants (NO_x , SO_x , COV, suies) souvent présents en très faible concentration dans le milieu (quelques centaines à quelques milliers de ppm). Les émissions de ces polluants sont réglementées et les normes européennes et internationales sur les taux admissibles sont de plus en plus contraignantes pour les industriels. Afin de répondre à ces réglementations, plusieurs technologies classiques de dépollution des effluents gazeux ont montré une grande efficacité de traitement en fonction du débit de gaz et de la nature et de la concentration des polluants. On peut citer à titre d'exemple l'oxydation thermique ou catalytique (ADEME) et la réduction catalytique sélective (Chatterjee 2007) (Jacubowicz 1998). Cependant, ces techniques sont mises en défaut lorsqu'il s'agit de traiter de faibles concentrations de polluants (< 1000 ppm). Cela nécessite souvent un chauffage additionnel du système conduisant à une dépense énergétique importante, surtout en présence d'un flux de gaz important.

Dans le domaine automobile, le respect des normes anti-pollution a conduit les constructeurs à développer de nouveaux moteurs, pour lesquels les rejets contiennent une quantité importante d'oxygène. Or ceci limite l'efficacité des méthodes catalytiques conventionnelles. L'une des techniques prometteuses pour la destruction des oxydes d'azote est la technologie plasma non thermique. Cette technologie permet de créer des radicaux actifs en proportion similaire à celle des polluants dans le gaz et de pouvoir les traiter sélectivement. Généralement, le traitement plasma est couplé avec un procédé catalytique de réduction. Dans le cas du traitement des NO par exemple, les décharges électriques ont un effet oxydant qui transforme une part importante du NO en NO_2 , ces derniers étant réduits plus efficacement par les procédés catalytiques avec l'adjonction d'un réducteur (tel que le NH_3 ou des hydrocarbures) (Kim 2004). Dans le cas du traitement des COV et les NO_x , c'est l'ozone qui favorise la décomposition par procédés catalytiques.

Dans notre étude, nous allons simuler l'effet des décharges électriques sur la transformation du monoxyde d'azote NO présent initialement à hauteur de 400 ppm dans de l'air sec à 300 K et à la pression atmosphérique. La configuration et les conditions de simulation sont très similaires à celles décrites précédemment. Un écoulement transversal de 5 m.s^{-1} traverse un réacteur multi-pointes plan alimenté en régime de tension continu d'une amplitude de 7,2 kV. Le nombre de pointes pourra varier de 1 à 10 et la durée de simulation sera étendue jusqu'à un maximum de 10 ms (soit 100 phases de décharge / post décharge). Nous prenons en compte les mêmes espèces chimiques et les mêmes réactions citées dans l'annexe A. Les 10 espèces ainsi que les 23 réactions ont été choisies en raison de leurs importances relatives sur, en particulier, la destruction des oxydes d'azote et la production d'ozone.

Avant de pousser la simulation dans ces retranchements, nous allons dans un premier temps, étudier la transformation de NO dans un cas mono pointe puis multi pointes avec 2 vitesses latérales d'écoulement de 5 et 10 m.s^{-1} . Les durées physiques d'étude seront limitées à 1ms (soit 10 phases de décharge / post-décharge) et le nombre de pointes à 4. Dans un second paragraphe, nous suivrons la transformation de NO sur une durée physique de 10 ms (soit 100 phases de décharge / post-décharge) avec un nombre de pointes allant jusqu'à 10.

IV.2 Etude sur un temps de traitement de 1ms

Les cartographies de la figure IV.18 montrent l'évolution de la densité du monoxyde d'azote NO aux instants 0,1ms, 0,2ms, 0,8ms et 1ms lorsqu'une seule pointe est alimentée en tension. Au bout de 0,1ms, c'est-à-dire vers la fin de la première phase de post décharge, nous remarquons que la destruction de NO est surtout efficace au voisinage de la pointe. En effet, NO est réduit par la réaction (2), $\text{N} + \text{NO} \rightarrow \text{N}_2 + \text{O}$ (voir annexe A) et oxydé par la réaction à trois corps (4) $\text{O} + \text{NO} + \text{M} \rightarrow \text{NO}_2 + \text{M}$. Or l'efficacité de ces réactions est fortement accrue au voisinage de la pointe à cause de la forte concentration des radicaux N et O à la fin de chaque phase de décharge (voir la figure III.5 du chapitre 3). C'est d'ailleurs la réaction (4) qui explique la création du dioxyde d'azote NO_2 à l'endroit même où la concentration du monoxyde d'azote NO diminue (comparer les figures IV.18 et IV.19 à 0,1 ms). Cependant, après la phase de décharge, le déficit de concentration de NO au voisinage de la pointe n'est pas comblé par l'apport permanent de molécules de NO dans l'écoulement transversal (voir la

figure IV.18 à 0,2 ms). En effet, dès le début de la phase de post-décharge, la réaction (5) $\text{O}_3 + \text{NO} \rightarrow \text{O}_2 + \text{NO}_2$ oxyde les molécules de NO dès qu'elles pénètrent dans le panache de concentration de O_3 (voir figure IV.20). Ceci conduit à la formation du panache de NO_2 visible sur la figure IV.19 à 1ms. Toutefois, le maximum de concentration de NO_2 ne se situe pas au voisinage de la pointe car, comme nous l'avons déjà vu dans le paragraphe précédent, la réaction (6) $\text{O} + \text{NO}_2 \rightarrow \text{NO} + \text{O}_2$ fait baisser la concentration de NO_2 dans le canal ionisé à chaque injection des radicaux O par les décharges successives.

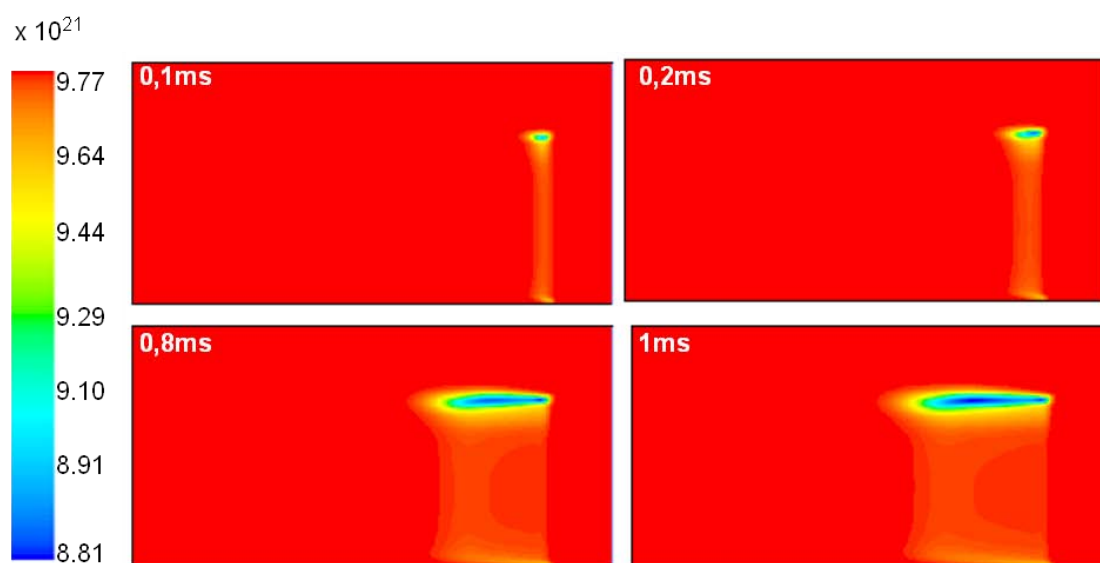


Figure IV.18 : Cartographies des densités de NO en m^{-3} (domaine de $1 \text{ cm} \times 2 \text{ cm}$)

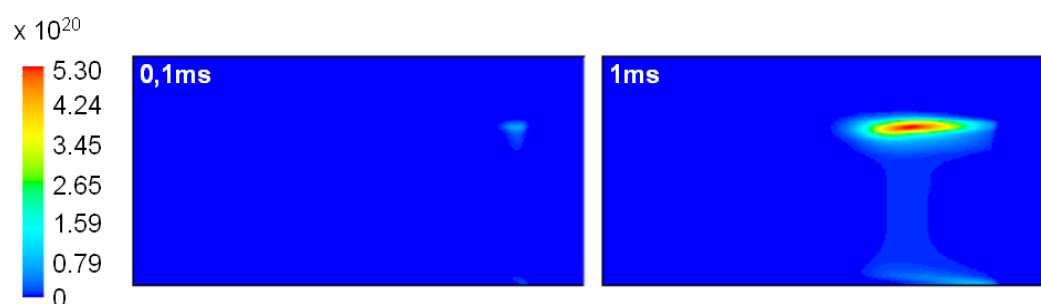


Figure IV.19 : Cartographies des densités de NO_2 en m^{-3} (domaine de $1 \text{ cm} \times 2 \text{ cm}$)

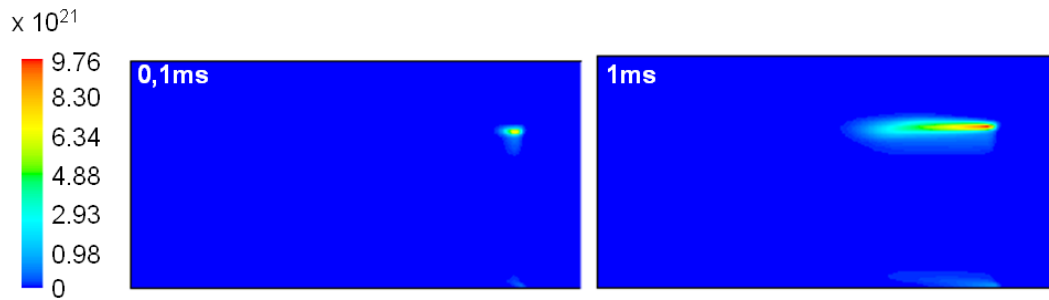


Figure IV.20 : Cartographies des densités de O_3 en m^{-3} (domaine de $1\text{ cm} \times 2\text{ cm}$)

La diminution de la concentration moyenne de NO, calculée sur tout le domaine, est représentée sur la figure IV.21 en échelle normée. Elle présente une décroissance quasi-linéaire en fonction du temps, c'est-à-dire en fonction du nombre de décharges ayant activé le milieu. Au bout de 10 décharges successives (soit à 1 ms), la destruction atteint 0,2% pour une seule pointe activée dans le réacteur.

Au bilan, la zone de destruction de NO s'étend à partir de la pointe et se confond avec la traînée d'ozone générée par l'écoulement.

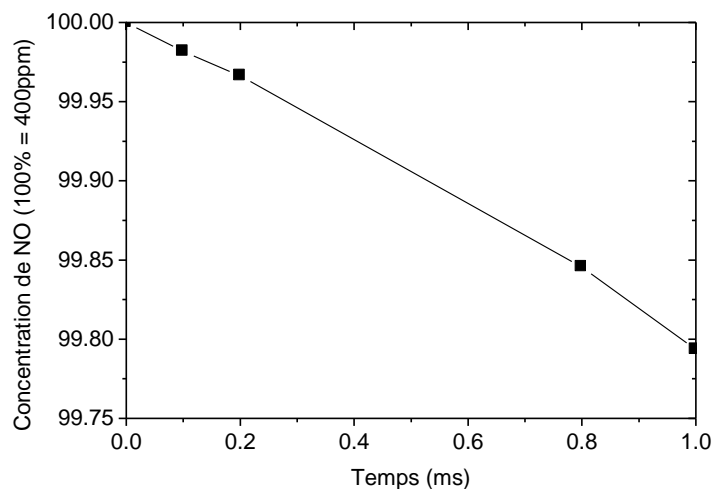


Figure IV.21 : Variation de la concentration moyenne de NO en échelle normée, en fonction du temps et pour une seule pointe activée (100% = 400 ppm)

La figure IV.22 montre la distribution spatiale de la température du gaz et des densités NO_2 , O_3 , et NO à 1 ms lorsque 4 pointes sont mises sous haute tension. La réactivité du mélange décrite précédemment s'applique ici également. Dans ces grandes lignes, NO est oxydé en

NO₂ dans le canal ionisé sous l’action du radical O et dans le volume sous l’action des molécules d’ozone O₃. La destruction de NO et la formation de NO₂ se confondent donc avec les zones de forte concentration d’ozone. De plus, durant chaque phase de décharge, une partie de la population du NO₂ est réduit en NO par interaction avec les radicaux O. Avec 4 pointes, les panaches de densité d’ozone se chevauchent conduisant à des zones locales de plus forte concentration au voisinage des 3^{ème} et 4^{ème} pointes. C’est à ces endroits que la destruction du monoxyde d’azote est également la plus forte. Finalement une forte corrélation est visible entre l’évolution de la température et des densités de O₃ et de NO.

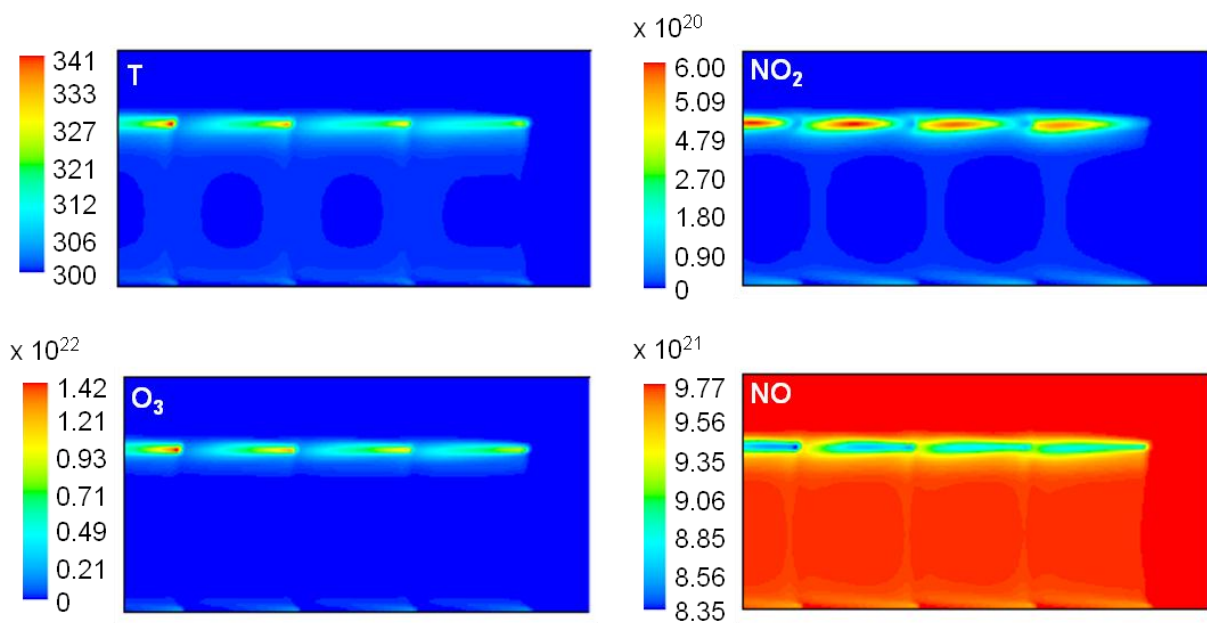


Figure IV.22 : Cartographies de la température (K) et des densités de NO, NO₂ et O₃ (en m⁻³) à 1 ms lorsque 4 pointes sont activées (domaine 1 cm × 2 cm)

La figure IV.23 montre l’évolution de la concentration moyenne de NO en échelle normée, au bout de 1ms de traitement et en fonction du nombre de pointes mises sous tension. La moyenne a été effectuée soit sur la totalité domaine de calcul soit uniquement à la sortie du domaine. Ces dernières valeurs pourraient être comparées à celles mesurées expérimentalement dans le cas de bilans d’entrée-sortie.

Comme on pouvait s’y attendre, la destruction de NO dans le domaine est d’autant plus grande que le nombre de pointes activées est élevé. Sur la durée d’étude (1 ms), la

concentration moyenne de NO à la sortie de domaine reste constante jusqu'à 3 pointes. En effet, la traînée d'ozone engendrée par la pointe la plus proche de la sortie n'atteint pas le bord du domaine de calcul et n'influence donc pas l'évolution de la concentration de NO à cet endroit. La quatrième pointe est placée à 2,5 mm du bord gauche du domaine. Dans ce cas, la traînée d'ozone est en mesure d'oxyder le NO dont la concentration moyenne baisse de 0,8% en sortie au bout de 1ms de traitement. La baisse de la concentration de NO moyennée sur tout le domaine est linéaire jusqu'à 3 pointes. Pour 4 pointes, une partie des molécules de NO a quitté le domaine et n'intervient donc plus dans la moyenne. En moyenne, la concentration de NO dans le réacteur baisse au maximum de 0,7% pour 4 pointes et au bout de 1ms.

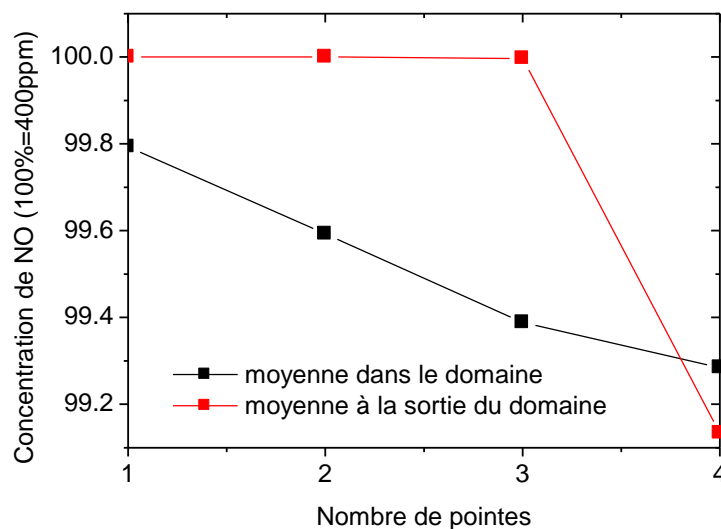


Figure IV.23: Concentration moyenne de NO en échelle normée à 1ms et en fonction du nombre de pointes (100% = 400 ppm)

Cette première étude nous a permis de cerner les principales voies cinétiques de transformation des NO_x et d'analyser la destruction du monoxyde d'azote en fonction du nombre de pointes mises sous tension. Après cette étude paramétrique, nous allons augmenter le temps de traitement jusqu'à une durée physique de 10 ms avec un maximum de 10 pointes. Cela correspond à 100 phases de décharge / post-décharge.

IV.3 Etude sur un temps de traitement de 10ms (100 décharges)

Les figures IV.24 et IV.25 montrent l'évolution de la concentration de NO lorsqu'une haute tension de 7,2 kV est appliquée à trois et quatre pointes aux instants 2 ms, 5 ms et 10 ms. Comme la fréquence de répétition des décharges est égale à 10 kHz, ces instants correspondent respectivement à la fin de la 20^{ème}, 50^{ème} et 100^{ème} phase décharge / post décharge. Ceci veut dire qu'au total, 100 pulses de décharges ont été appliqués. Ces décharges sont couplées avec un écoulement transversal permanent (5 m.s^{-1}) d'air pollué par 400 ppm de NO.

La densité de NO continue à baisser avec l'augmentation du temps de traitement. Au bout de 10 ms, la concentration de NO dans le panache a été divisée par 1,65. Les cartographies de la figure IV.25 montrent qu'une zone de recirculation prend naissance au voisinage de la 4^{ème} pointe. Cette perturbation apparaît dès 2,6 ms et peut s'expliquer par l'influence des conditions aux limites imposées à la sortie du réacteur. Si on compare les figures IV.22 et IV.25, on constate que la diminution du NO est plus homogène et s'étend transversalement à la direction d'écoulement à cause des phénomènes de diffusion. La destruction de NO au voisinage de la 1^{ère} pointe est plus faible. En effet, l'ozone, responsable de l'oxydation de NO, est transporté dans l'écoulement vers la sortie du domaine où il s'accumule. A proximité de la 1^{ère} pointe, la dépopulation du NO est en partie comblée par l'apport permanent des molécules de NO transportées dans l'écoulement.

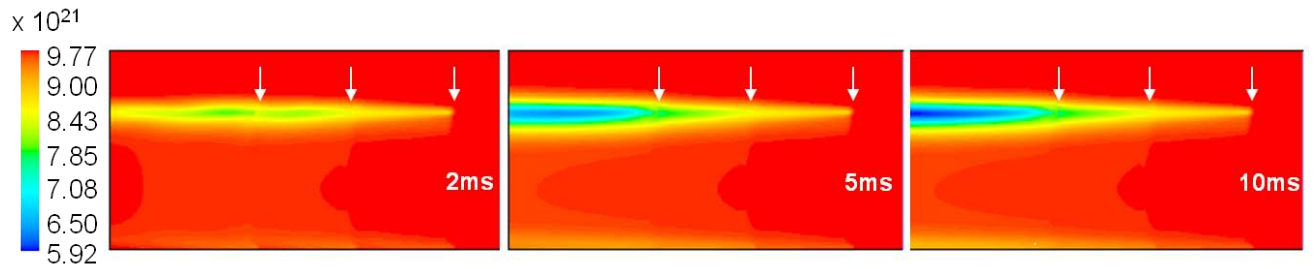


Figure IV.24: Cartographies de la densité de NO (m^{-3}) pour 3 points activés

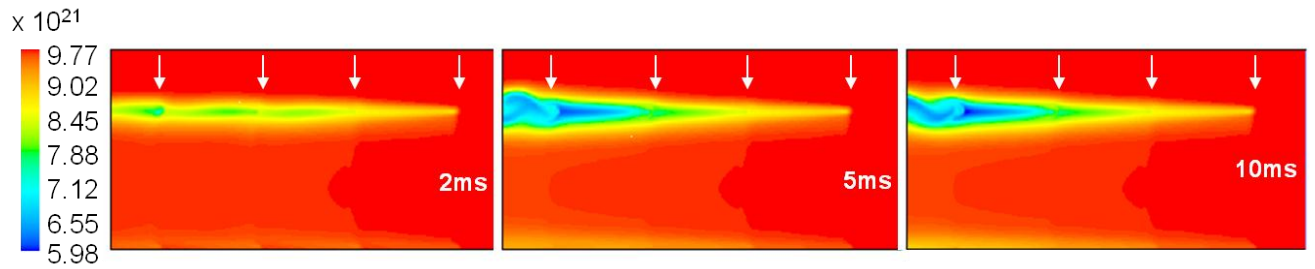


Figure IV.25: Cartographies de la densité de NO (m^{-3}) pour 4 points activés

Au bout de 10ms et avec 4 pointes, la concentration moyenne de NO dans le réacteur a diminué de 2,5%. Sa concentration en sortie a baissé de plus de 6%.

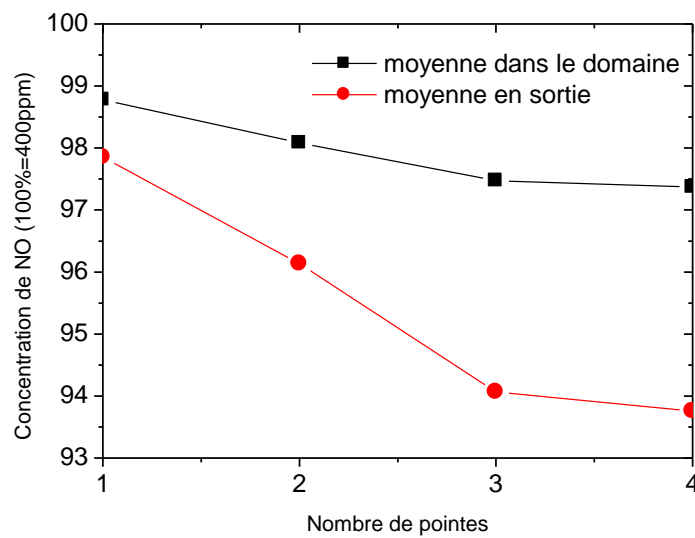


Figure IV.26: Evolution de la concentration moyenne de NO en échelle normée à 10 ms et en fonction du nombre de pointes activées.

Dans la suite nous allons étudier un réacteur d'une longueur de 5,5 cm et de 1 cm de largeur possédant 10 pointes espacées de 5mm les unes des autres. La durée d'étude ira jusqu'à 10 ms et prendra donc en compte 100 phases de décharge / post décharge. Le domaine de calcul est divisé en 220 000 mailles.

Les figures IV.27, IV.28 et IV.29 montrent les cartographies d'évolution des concentrations de NO, de O₃ et de la température. On voit apparaître dès 1ms, des zones de recirculation qui prennent rapidement de l'ampleur ce qui tend à homogénéiser la répartition des concentrations et de la température du gaz. Ces effets tourbillonnaires prennent naissance dès la 4^{ème} pointe et s'étendent progressivement à tout le domaine. L'apparition de ces tourbillons s'explique par les chocs thermiques successifs engendrés au voisinage de chaque pointe lors des phases de décharges. Ces chocs thermiques constituent des obstacles à l'écoulement initial ce qui perturbe et redistribue le flux initial de vitesse. Toutefois à 1 ms, les effets ne sont notables qu'après la 4^{ème} pointe, ce qui indique une inertie du phénomène nécessitant pour démarrer un effet mémoire cumulé de 3 pointes au moins.

Pour s'assurer que ces effets ne sont pas liés à un effet de bord, la figure IV.30 montre les résultats d'une simulation avec uniquement 6 pointes mises sous tension. La dernière pointe est distante de 2,25 mm de la sortie du domaine. On constate que, malgré cet éloignement, les mêmes perturbations apparaissent ce qui montre qu'elles sont liées à l'effet cumulé des chocs thermiques successifs et non à un effet de bord.

La cinétique réactionnelle est la même que précédemment. On constate que la destruction du monoxyde d'azote correspond aux zones de forte concentration d'ozone (comparer les figures IV.28 et IV.29). De plus, les allures des cartographies de la concentration d'ozone et de la température sont très proches. En effet, dans les deux cas, la création de l'ozone et l'accumulation de l'énergie thermique s'effectuent au voisinage de la pointe, dans le canal ionisé et uniquement durant les phases de décharge. Les molécules d'ozone et la température sont ensuite transportées le long des lignes de champ de l'écoulement ce qui explique la similitude des cartographies.

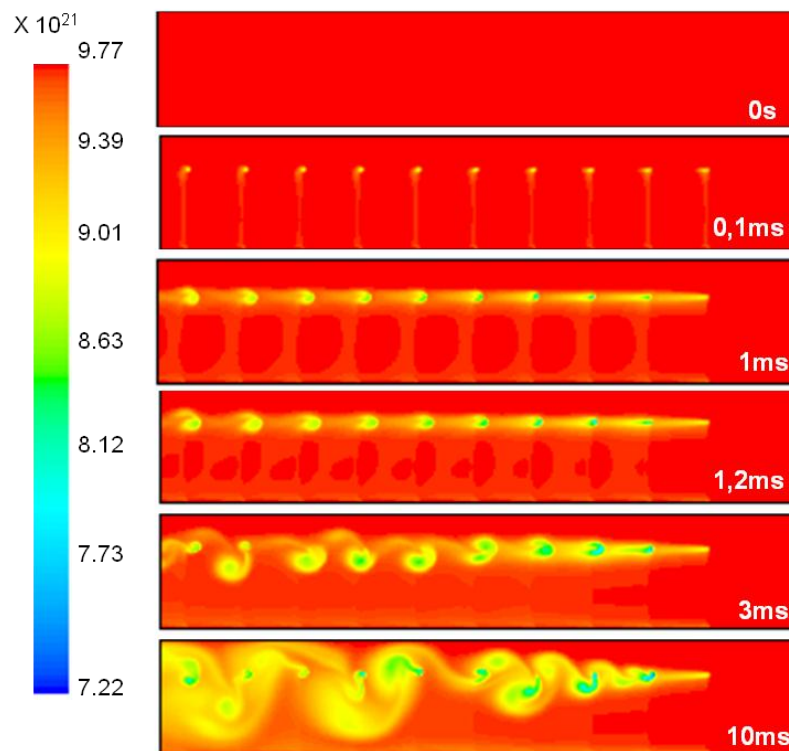


Figure IV.27: Cartographies de la concentration de NO (m^{-3}) lorsque 10 pointes sont activées (domaine $5,5 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$)

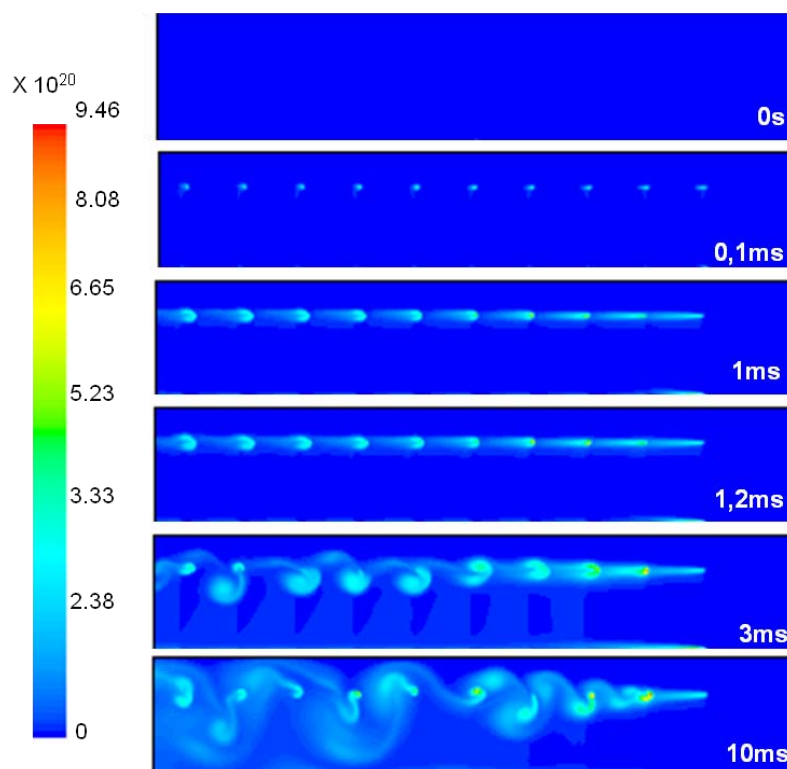


Figure IV.28: Cartographie de la concentration de O_3 (m^{-3}) lorsque 10 pointes sont activées

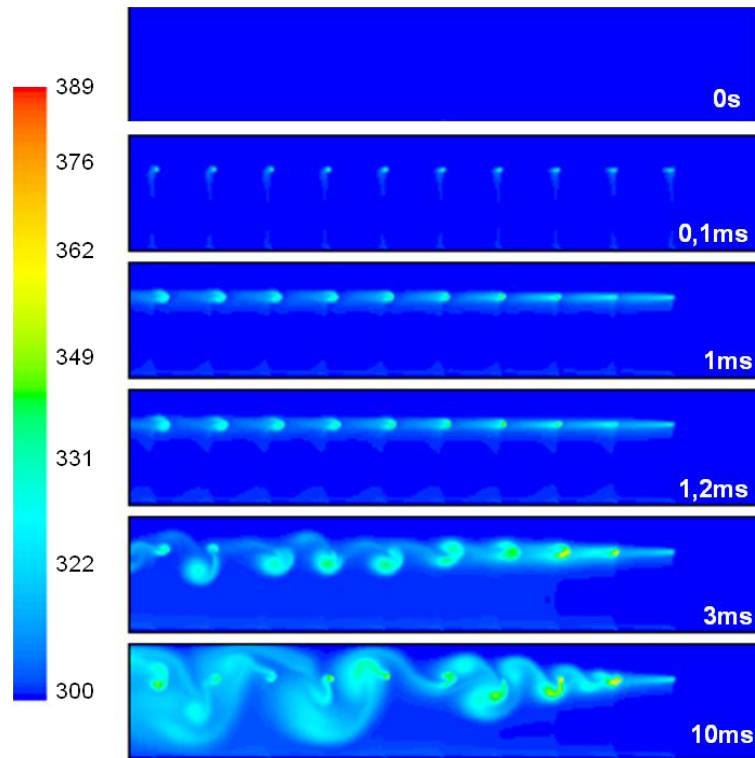


Figure IV.29: Cartographie de la température du gaz (K) lorsque 10 pointes sont activées

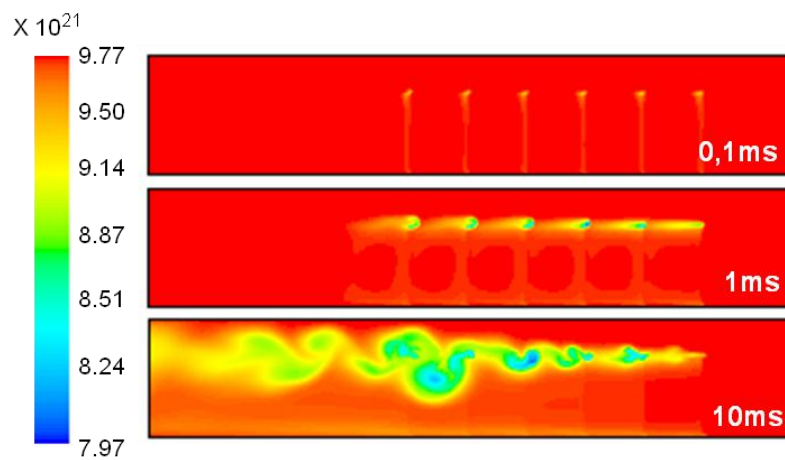


Figure IV.30: Cartographie de la concentration de NO (m^{-3}) lorsque 6 pointes sont activées (domaine 5,5 cm x 1 cm)

La figure IV.31 donne l'évolution dans le temps des densités moyennes de NO, NO₂, et O₃ calculées dans tout le domaine ou à la frontière gauche du domaine lorsque dix décharges sont activées. Au bout de 10 ms, et à la sortie du domaine, la concentration moyenne de NO est de

381,6ppm et celle du NO_2 est de 1,4 ppm. Au bilan, la concentration moyenne des NO_x à la sortie du réacteur a diminué de 400 ppm à 383 ppm soit une baisse de 4,25%. Parallèlement, la température moyenne dans le réacteur a augmenté d'une dizaine de kelvin au bout de 10 ms (voir figure IV.32). Dans le réacteur, la baisse du monoxyde d'azote NO est de l'ordre de 10 ppm alors que la croissance du dioxyde d'azote NO_2 et de l'ozone O_3 reste inférieure à 1 ppm. La croissance de l'ozone dans le réacteur peut-être comparée à celle représentée sur la figure IV.12 lorsque le milieu n'est pas initialement pollué par 400 ppm de NO. Dans ce cas, l'augmentation de la concentration d'ozone au bout de 1ms et avec uniquement 4 pointes atteint $4 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$ soit environ 16 ppm. La comparaison reflète l'effet de la réaction (5) $\text{O}_3 + \text{NO} \rightarrow \text{O}_2 + \text{NO}_2$ dans le milieu initialement pollué. On en déduit qu'elle consomme une grande partie des molécules O_3 pour oxyder les molécules de NO dont la concentration diminue d'une dizaine de ppm. Cette oxydation limite l'accumulation d'ozone dans le réacteur à moins de 1 ppm (voir la figure IV.31). La production de NO_2 et la destruction de NO sont également régulées par un cycle d'oxydo-réduction faisant intervenir la réaction (5) $\text{O}_3 + \text{NO} \rightarrow \text{O}_2 + \text{NO}_2$ et la réaction (6) $\text{O} + \text{NO}_2 \rightarrow \text{O}_2 + \text{NO}$. Ces réactions n'interviennent cependant pas aux mêmes endroits dans le réacteur mais ont un effet moyen sur les densités de NO et NO_2 . En effet, la réaction (5) se déroule durant les phases de décharge et de post décharge et dans tout le domaine aux endroits où la concentration d'ozone est la plus forte tandis que la réaction (6) n'est efficace que durant les phases de décharge et à l'intérieur des canaux d'injection puisqu'elle fait intervenir le radical O.

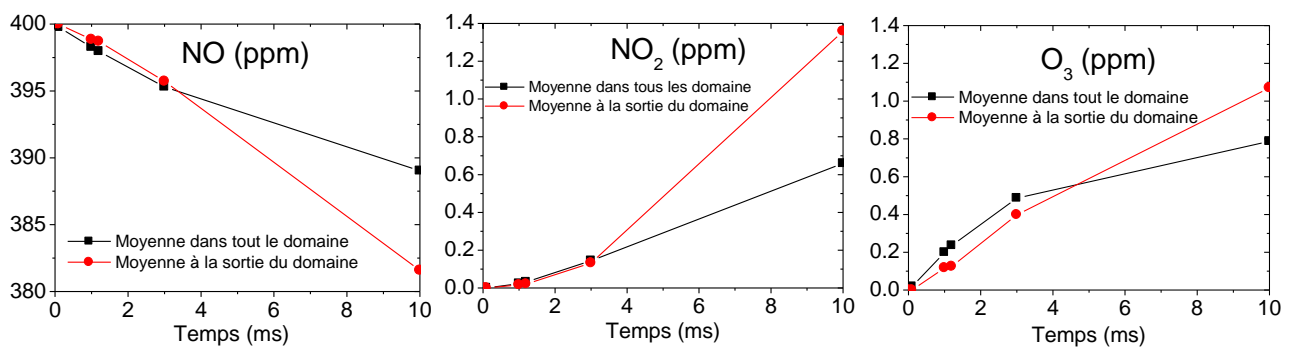


Figure IV.31: Evolution temporelle des densités moyennes de NO, NO_2 et O_3 en ppm

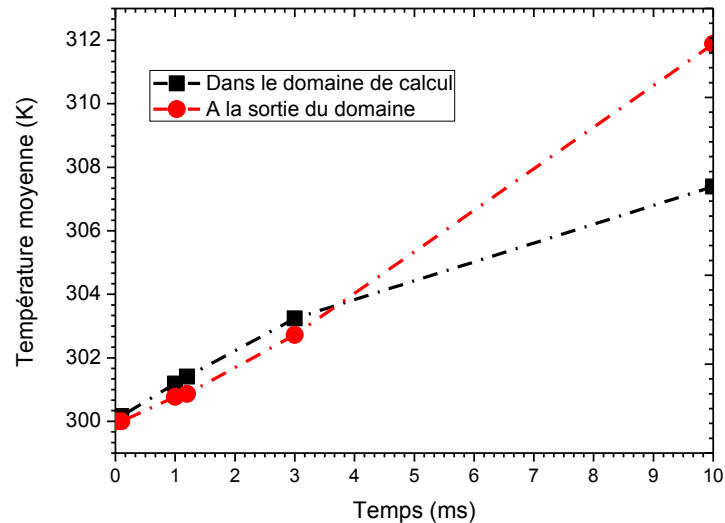


Figure IV.32: Evolution temporelle de la température moyenne du gaz dans et à la sortie du domaine.

Sur la base de ces résultats, nous pouvons estimer l'efficacité énergétique du réacteur pour la destruction du monoxyde d'azote au bout de 10 ms de traitement et pour 10 pointes activées. La diminution moyenne du NO dans le réacteur est de l'ordre de 10 ppm soit une destruction de $2,44 \cdot 10^{14}$ molécules par cm^3 c'est-à-dire une perte de masse de $6,7 \cdot 10^{-2} \mu\text{g}$ (pour un volume de $5,5 \text{ cm}^3$). L'énergie injectée par pointe à chaque phase de décharge est de 0,01 mJ. Ainsi, l'énergie totale injectée au bout de 10 ms (soit 100 phases de décharges) et par 10 pointes est de 10 mJ. On en déduit que le coût énergétique est de $6,7 \mu\text{g/J}$ soit encore quelques 24 g/kWh. Cette estimation est en adéquation avec des résultats expérimentaux relevés dans la littérature (Kim 2004).

Remarques sur les durées de simulation :

Le temps de calcul est une des fortes contraintes de cette étude. Une étude paramétrique sur les pas de temps en phase de décharge et de post-décharge nous a permis d'optimiser les durées de simulation en s'assurant de la convergence des résultats. Le maillage a été choisi homogène avec des mailles carrées de $50 \mu\text{m}$ de côté soit un nombre de maille totale de 220 000. Dans ces conditions et pour étudier le comportement du réacteur jusqu'à 10 ms avec des critères de convergence bien choisis, il a fallu environ 3370 heures de calcul sur le supercalculateur Hypérion du CICT (Calmip 2007) en configuration mono-processeur ce qui

correspond à presque 5 mois de calcul ! Cette forte contrainte limite l'opportunité d'augmenter la durée de la simulation jusqu'à 1 s par exemple sans faire un travail préalable d'optimisation et de simplification. Ces optimisations concernent la prise en compte d'un maillage non homogène et resserré au voisinage des zones d'injection, l'utilisation des performances du calcul parallèle (déjà implanté dans le logiciel FLUENT) et la simplification physique de certaines équations du modèle (comme par exemple la non prise en compte de la diffusion des espèces majoritaires O_2 et N_2 dans le mélange).

V. Conclusion

Ce chapitre nous a permis de tester les capacités du code à simuler en 2D des réacteurs couronne jusqu'à une durée physique de 10 ms et pour un maximum de 10 pointes. La simulation nous a permis de comprendre et de suivre en détail l'évolution de toutes les espèces chimiques prises en compte pour modéliser la cinétique réactionnelle de formation de l'ozone et de destruction des NO_x . Les simulations sur des durées plus longues et en prenant en compte un nombre de pointes supérieur à quatre ont montré l'apparition de zones de recirculation qui s'amorcent aux voisinages des pointes à cause des chocs thermiques successifs qui perturbent progressivement l'écoulement. Les tourbillons engendrés tendent à homogénéiser le milieu. Les calculs d'efficacité énergétique montrent que la simulation reproduit les ordres de grandeurs obtenues expérimentalement dans la littérature.

La principale contrainte concerne les durées de simulation. Une projection de ce travail incluant des durées d'analyse plus longues et une cinétique plus complexe nécessitera un travail d'optimisation important. Cela pourra également passer par des études d'équivalence stationnaire.

Chapitre V : Modélisation 3D d'une décharge couronne destinée à la dépollution des gaz

I. Introduction	157
II. Conditions de simulation :	157
III. Description du maillage du réacteur mono pointe	158
IV. Résultats de la modélisation 3D en configuration mono Pointe-Plan:	160
V. Résultats de la dépollution avec une décharge multi Pointes-Plan :	165
VI. Conclusion :	170

Chapitre V. : Modélisation 3D d'une décharge couronne destinée à la dépollution des gaz

I. Introduction

Ce chapitre présente les premiers résultats de la modélisation 3D d'une décharge couronne de configuration mono et multi pointes-plan traversant un gaz d'échappement témoin à savoir de l'air sec pollué par 400ppm de NO. L'objectif de cette modélisation est de visualiser la répartition spatio-temporelle des différentes espèces chimiques et de la température du gaz dans le volume du réacteur, l'interaction en 3D des décharges entre elles et de comparer le pourcentage de destruction de NO avec celui obtenu par la modélisation 2D.

Nous allons prendre en compte dans cette modélisation des géométries simples représentant des zones réduites et parallélépipédiques de l'enceinte du réacteur expérimental. Le code 2D utilisé précédemment sera étendu au cas 3D pour l'étude d'un réacteur mono-pointe et multi-pointes (jusqu'à 4 pointes) avec une durée de traitement maximale de 1ms, correspondant à 10 périodes de décharge et post décharge.

II. Conditions de simulation :

Dans un premier temps, une unique décharge a été modélisée dans un cube de 1cm de coté qui représente une zone réduite de l'enceinte du réacteur expérimental. Le domaine de calcul a ensuite été élargi jusqu'à un volume (2cm x 1cm x 1cm) comprenant quatre décharges, dans le but de suivre la destruction de NO en 3D. Les conditions aux limites appliquées à ces géométries pour résoudre les équations gouvernantes sont les mêmes que celles utilisées au cours de la modélisation 2D. Ces conditions sont issues des conditions réelles expérimentales du réacteur corona de dépollution des gaz d'échappements. A l'entrée du réacteur la vitesse

d'écoulement est latérale et fixée à 5m.s^{-1} , le gaz considéré est de l'air initialement pollué par 400ppm de NO. Aux parois, la condition d'adhérence a été imposée ($\bar{u}=0$) ainsi qu'une température constante de 300K. La zone de décharge est décrite sous forme d'un canal en couleur rouge, dans la figure V.1, et est simulée par l'injection de termes sources de la quantité de mouvement, d'énergie et des espèces chimiques sur un espace inter électrode de diamètre de $50\mu\text{m}$ et de longueur de 7mm. Cette zone de décharge est localisée au centre de cube ($x = 5\text{mm}$, $y = [0, 7\text{mm}]$ et $z = 5\text{mm}$). Le schéma réactif pris en compte est identique à celui utilisé pour la modélisation 2D (10 espèces chimiques neutres et 23 réactions données en annexe). La figure V.1 montre la zone réduite du réacteur dans lequel nous avons couplé la décharge avec l'écoulement du gaz.

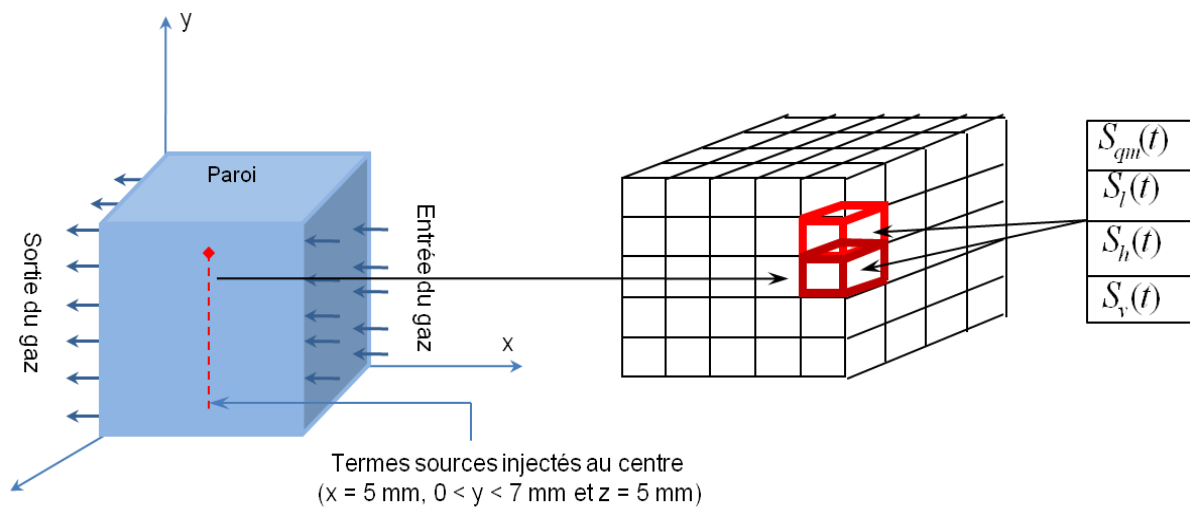


Figure V.1 : Schéma du domaine 3D de simulation d'une décharge mono pointe-plan et zoom sur la zone d'injection des termes sources (canal en rouge).

III. Description du maillage du réacteur mono pointe

Dans les chapitres précédents nous avons utilisé un maillage uniforme et homogène sur tout le domaine de calcul. Ce maillage divise la géométrie en carrés de dimension identique au diamètre de la décharge, soit $50\mu\text{m}$. Cette description du maillage n'est pas utilisable dans le cas 3D puisque un cube de 1cm demande un nombre de mailles trop important (8 000 000). Ceci conduit à des durées de calcul non envisageable en utilisant la version séquentielle de FLUENT sur la station Hypérion de CICT (Calmip 2007).

Cette difficulté a été contournée en traitant séparément trois zones de volume (Figure V.2). Autour du canal de décharge, le maillage est réalisé à partir de mailles cubiques de 50 μ m de côté. Dans cette zone, une forte définition est nécessaire pour prendre en compte correctement les phénomènes de transports-diffusifs liés à la présence de la décharge. Une zone large, dans laquelle nous avons augmenté la taille des mailles à des cubes de 500 μ m de côté vient compléter le maillage. Entre ces deux zones, nous avons considéré une zone de transition dans laquelle la dimension des mailles passe de 50 μ m à 100 μ m puis 250 μ m, assurant une bonne convergence des phénomènes de diffusion et de transport. Dans ces conditions le nombre de mailles total est de 21000, permettant une durée de convergence raisonnable et compatible avec nos moyens de calcul. A titre d'exemple, la durée d'un calcul 3D est alors de 6h45 pour un cycle décharge / post décharge (0,1ms).

Au préalable et pour s'assurer du choix judicieux du maillage, des tests ont été réalisés en faisant varier la taille des mailles externes à la zone d'injection entre 100 et 500 μ m pour s'assurer de l'unicité de la solution. A cause des durées de calcul, ces tests ont été réalisés en géométrie 2D identique à la coupe transversale intérieure de la figure V.2a. Pour un cycle décharge / post décharge (0,1ms), les temps de calcul 2D, obtenus avec les trois maillages testés et en utilisant des pas de temps adaptatifs durant la phase de post décharge, sont d'environ 4h40 avec des mailles de 100 μ m, 3h10 avec des mailles de 200 μ m et 1h45 avec des mailles de 500 μ m. En utilisant ces trois maillages, de légères différences non significatives sont apparues entre les résultats avec des critères de convergence identiques à ceux décrits précédemment pour le modèle 2D.

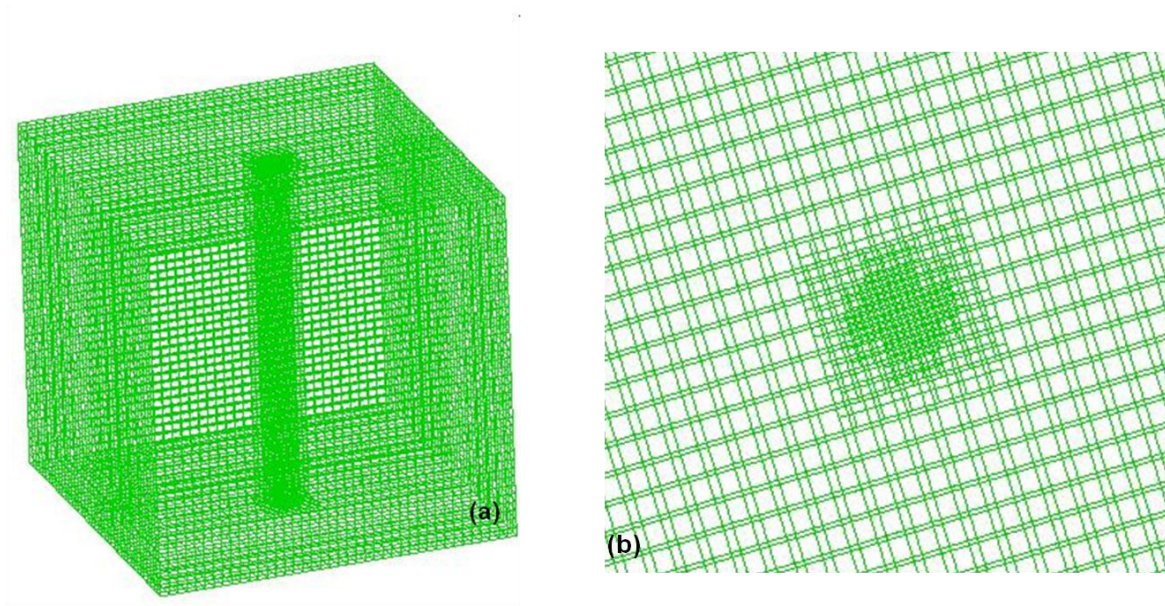


Figure V.2 : Maillage de la géométrie 3D. (a) toute la géométrie et (b) zoom sur la zone de la pointe (vue de dessus).

IV. Résultats de la modélisation 3D en configuration mono Pointe-Plan:

La figure V.3 montre la distribution spatiotemporelle de la température du gaz aux instants 0,1ms et 1ms. Ces instants correspondent, respectivement, à la fin de la première et de la dixième post décharge. Pour aider à la visualisation des résultats 3D, 2 plans d'intersection sont représentés : le plan horizontal $y = 7\text{mm}$ situé juste sous la pointe et le plan vertical $z = 5\text{mm}$ qui coupe le canal de décharge. Comme dans le cas 2D, l'énergie accumulée à la pointe est transportée dans l'écoulement et forme un panache de température. Ce panache s'élargit avec le temps par diffusion thermique dans les directions transversales à l'écoulement. A la fin de chaque phase de post décharge, la température du gaz a quasiment relaxé sur l'axe et sa valeur est faible à la pointe. L'accumulation d'énergie au bout de 10 décharges conduit à une augmentation locale de la température 15K au voisinage de la pointe. Les résultats obtenus sont très proches de ceux trouvés en 2D dans les mêmes conditions physiques de simulation. Par soucis de clarté, la figure III.18 (du chapitre III), montrant le champ de température en mono-pointe plan calculé par une simulation 2D, est reproduite dans la figure V.4. On peut

remarquer que les formes des panaches sont identiques et les températures maximales à la pointe sont très proches au bout de 1ms (315K en 3D et 318K en 2D).

La cartographie de la figure V.5 montre un zoom autour de la pointe à l'instant 1ms. On remarque quelques discontinuités qui apparaissent autour du contour extérieur qui entoure la pointe. Ces discontinuités s'expliquent par la non homogénéité du maillage puisqu'elles apparaissent dans la zone de transition entre le maillage fin et le maillage plus large. La parallélisation du code dans le futur ouvrira l'opportunité de raffiner le maillage dans cette zone ce qui devrait améliorer les résultats.

La figure V.6 permet de visualiser l'évolution spatiotemporelle de monoxyde d'azote à la fin de la première et de la dixième post décharge. On constate que, comme pour la simulation 2D, la répartition de la densité de NO dans le réacteur est similaire à celle de la température. En intensité et étendue spatiale, la destruction de NO est similaire à celle obtenue par la simulation 2D, comme le montre la comparaison de la figure V.6 avec la figure IV.18 (reproduite dans la figure V.7). Le tableau V.1 montre la comparaison entre les densités minimales de NO obtenues avec les simulations 2D et 3D.

	Simulation 2D	Simulation 3D
0,1ms	$9,01 \cdot 10^{21}$	$9,21 \cdot 10^{21}$
1ms	$8,81 \cdot 10^{21}$	$9,05 \cdot 10^{21}$

Tableau V.1 : Comparaison de la densité minimale de NO (m^{-3}) en présence d'une décharge dans les deux simulations 2D et 3D.

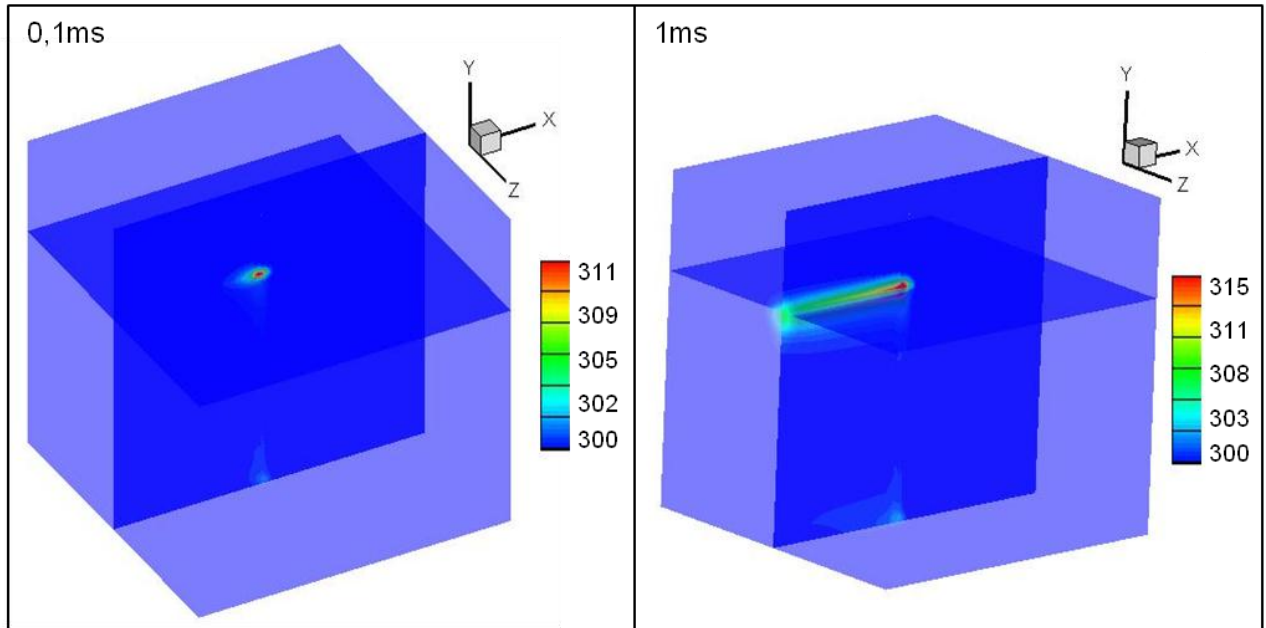


Figure V.3 : Cartographies 3D de la température du gaz en K (domaine de 1cm×1cm×1cm)

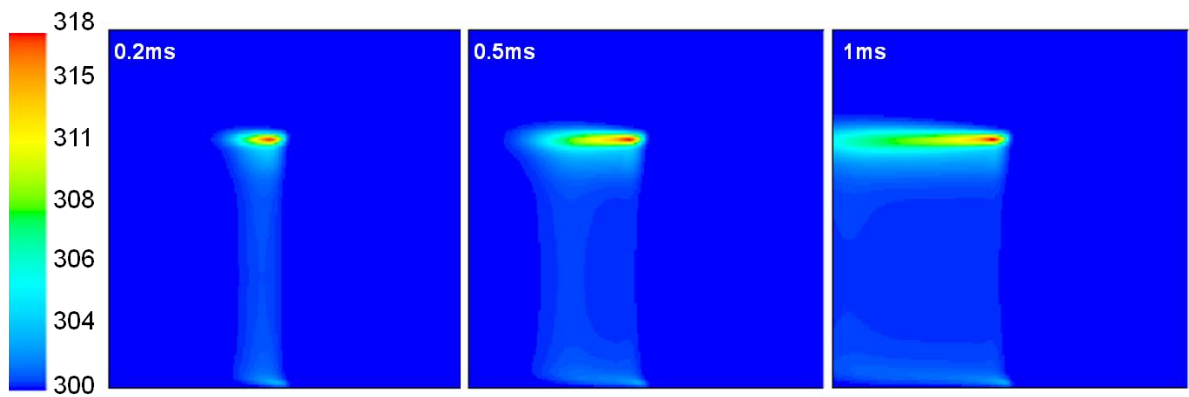


Figure V.4 : Cartographies 2D de la température du gaz en K obtenues par une simulation 2D dans les mêmes conditions physiques que la simulation 3D (domaine 1cm×1cm)

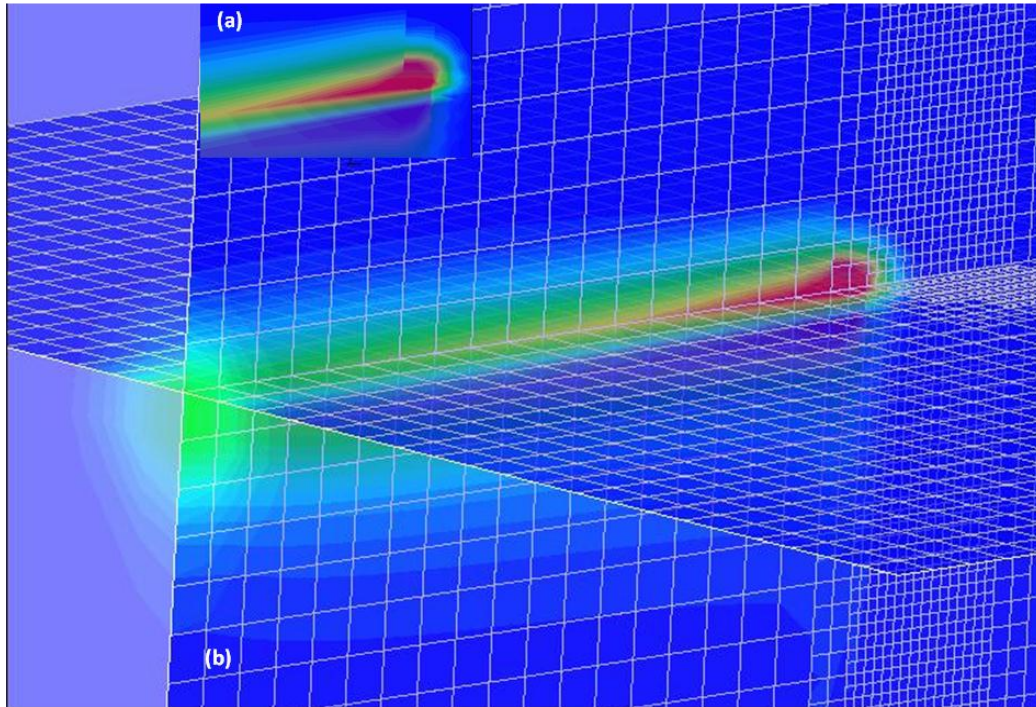


Figure V.5 : Zoom sur la distribution de température (K) autour de la pointe à l'instant $t = 1$ ms. (a) sans maillage et (b) avec le maillage.

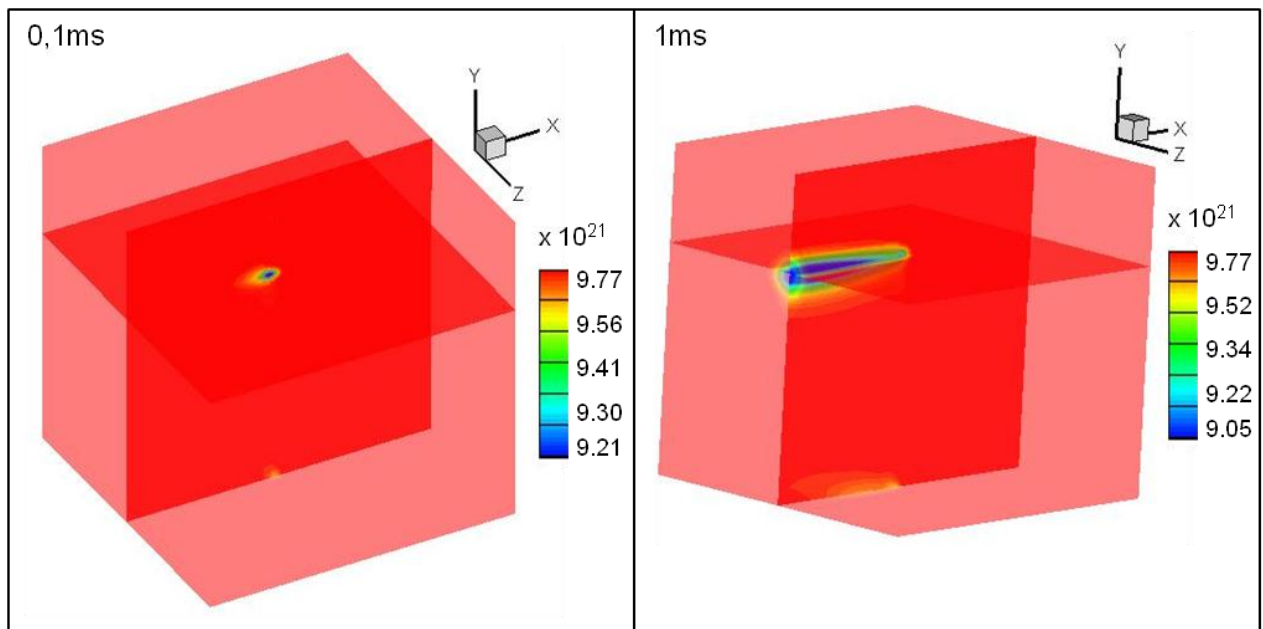


Figure V.6 : Cartographies 3D de la densité de NO en (m^{-3}) (domaine de $1\text{cm} \times 1\text{cm} \times 1\text{cm}$).

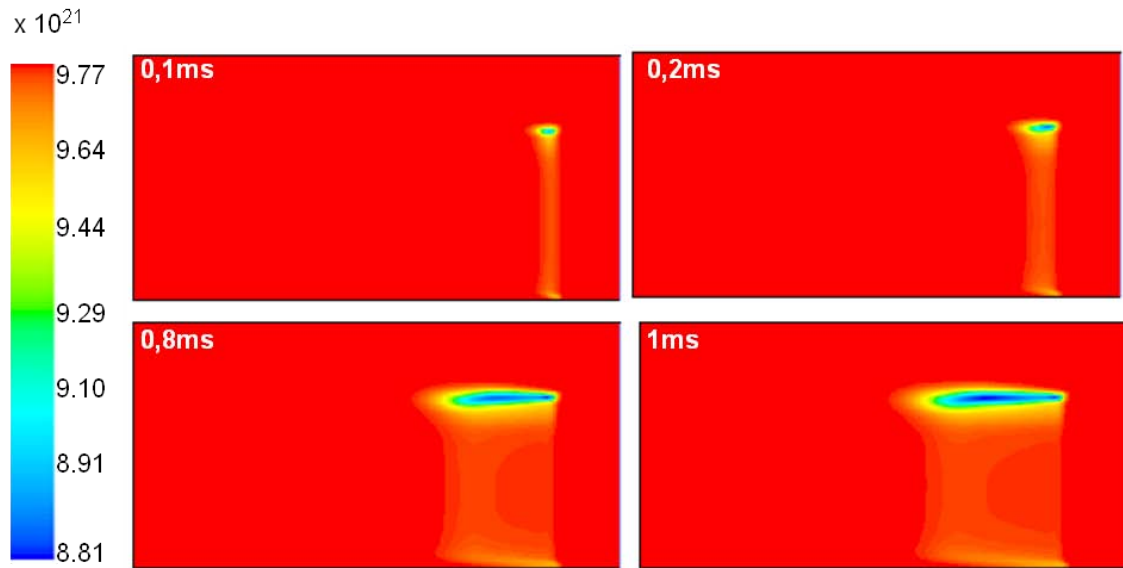


Figure V.7 : Cartographies des densités de NO en m^{-3} (domaine de $1\text{cm} \times 2\text{cm}$)

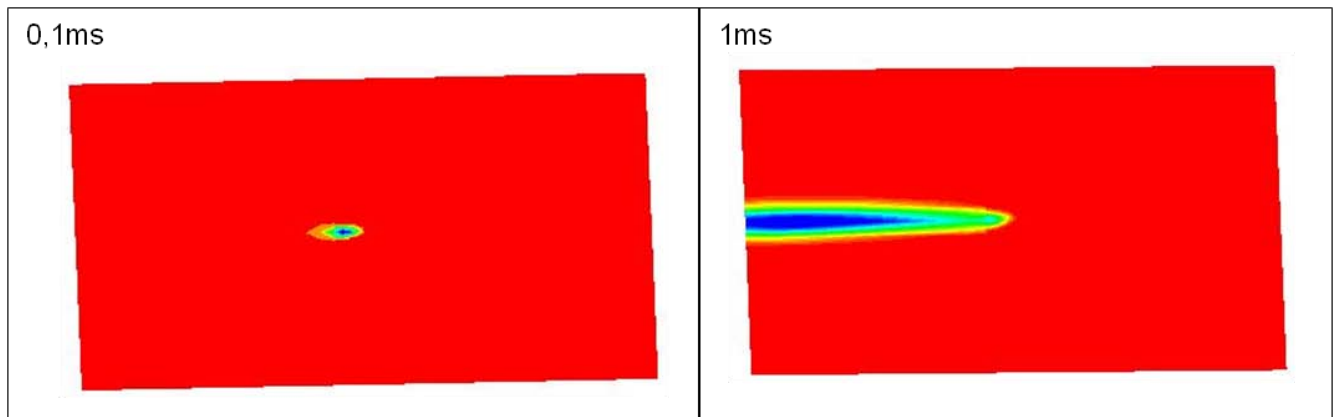


Figure V.8 : Diffusion de NO dans le plan horizontal de visualisation ($y = 7\text{mm}$).

La figure V.8 montre les effets du transport diffusif des molécules dans le plan de coupe horizontal $y = 7\text{ mm}$ situé juste sous la pointe. A l'instant 0,1 ms, c'est-à-dire à la fin de la première phase de post-décharge, la diminution de la concentration de NO s'étend sur une zone d'un diamètre environ 4 fois supérieur au diamètre du canal ionisé. Cette zone de destruction de NO s'étend jusqu'à atteindre une surface circulaire d'environ 1 mm^2 sur le plan

vertical en sortie du domaine d'étude. La simulation montre une diminution de 9% dans cette surface au bout de 1ms.

V. Résultats de la dépollution avec une décharge multi Pointes-Plan :

Dans la partie suivante, nous allons présenter les premiers résultats de la simulation 3D du couplage multi pointes avec l'écoulement d'un gaz pollué dans une géométrie à quatre électrodes. Les pointes étant espacées de 5 mm, l'implémentation de quatre décharges pointe-plan impose d'élargir le domaine de calcul à (2 cm x 1 cm x 1 cm), correspondant à un maillage dépassant 67000 mailles. Le maillage utilisé possède les mêmes caractéristiques que celles évoquées au paragraphe III, à savoir un resserrement et une augmentation du nombre de mailles au voisinage des quatre zones de décharges, comme on peut le voir sur la Figure V.9. Les conditions aux limites et les paramètres du calcul sont identiques à ceux utilisés pour le calcul 3D mono-pointe.

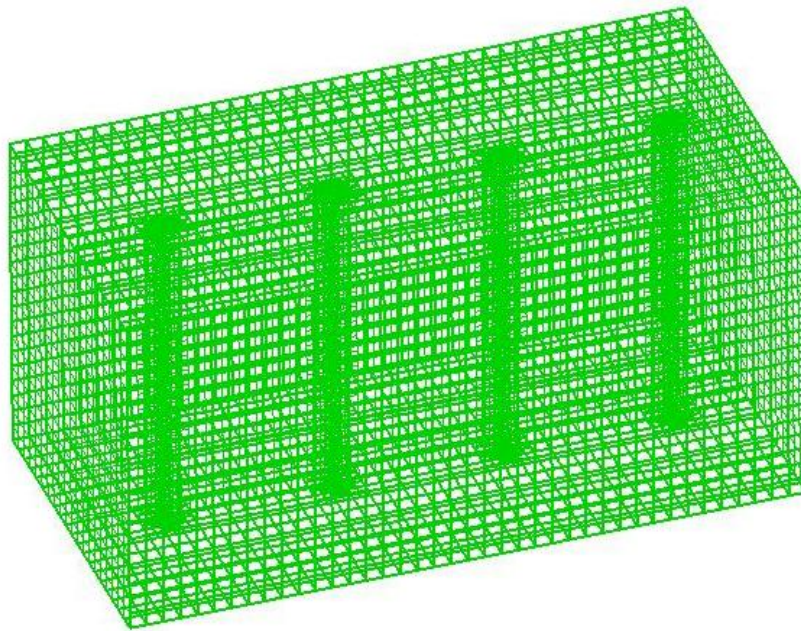


Figure V.9 : Maillage 3D de la configuration multi-pointes

L'ensemble des figures V.10 à V.13 permet de visualiser les répartitions de la température du gaz et de la densité de NO dans le volume du réacteur à l'instant 1ms, en s'appuyant sur les plans de coupe $y = 7 \text{ mm}$ et $z = 5 \text{ mm}$. Nous remarquons que l'interaction entre les pointes commence à partir de l'instant 0,8 ms, comme dans le cas de la simulation 2D. La comparaison de la destruction de NO avec la modélisation 2D montre qu'il n'y a quasiment pas de différence entre les deux simulations au niveau de la destruction locale de NO (valeur minimale et maximale) par contre la concentration de la densité moyenne de NO dans tout le domaine est de $9,75 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ en 3D contre $9,70 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ dans le cas de 2D. Ceci est tout à fait logique puisque le rapport entre le volume de traitement (comprenant le volume des canaux ionisés et le volume des traînées de concentration) et le volume total du domaine d'étude est beaucoup plus petit dans le cas 3D que dans le cas 2D. De ce fait, la diminution moyenne de la concentration de NO est plus faible en 3D qu'en 2D.

Comme dans la simulation 2D, les profils de la température du gaz et des espèces chimiques suivent les lignes de champ du flux de gaz et diffusent dans les directions transversales à l'écoulement.

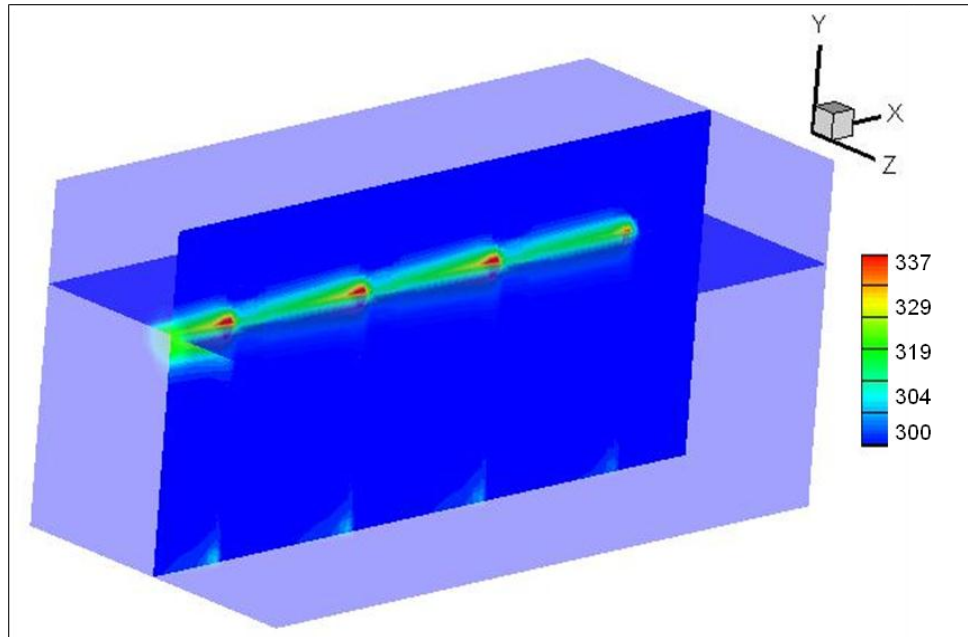


Figure V.10 : Cartographie 3D de la température du gaz (K) à $t = 1$ ms.

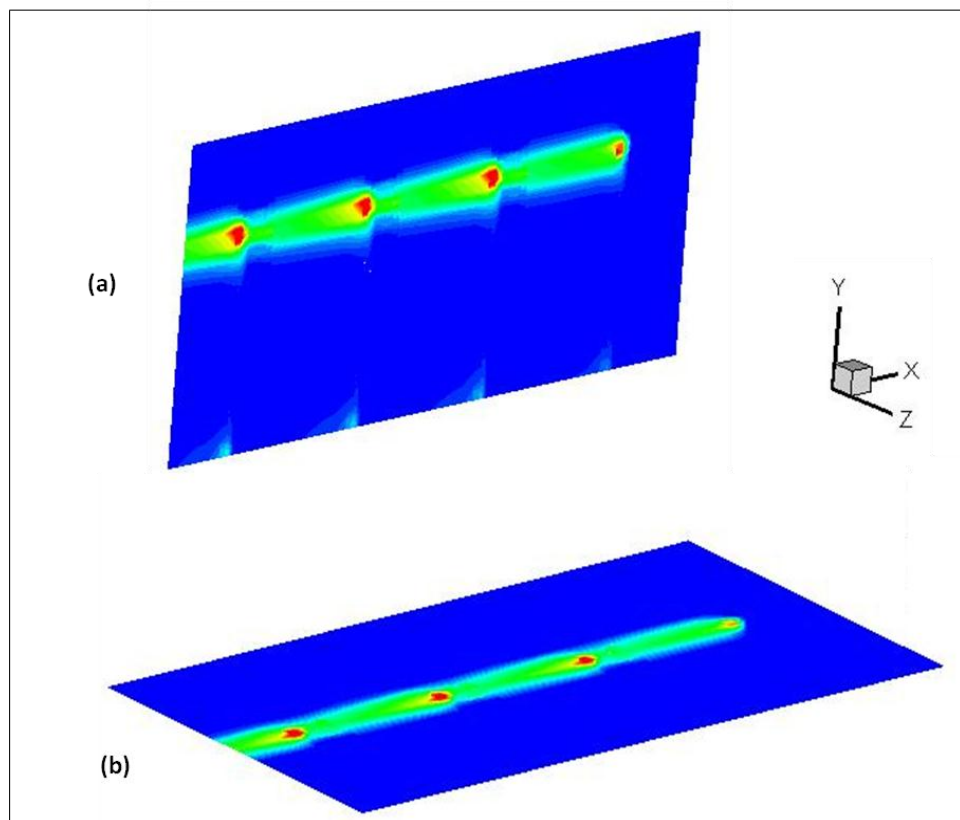


Figure V.11 : Champ de température 2D dans les plans de visualisation (a) $z = 5$ mm et (b) $y = 7$ mm à l'instant $t = 1$ ms.

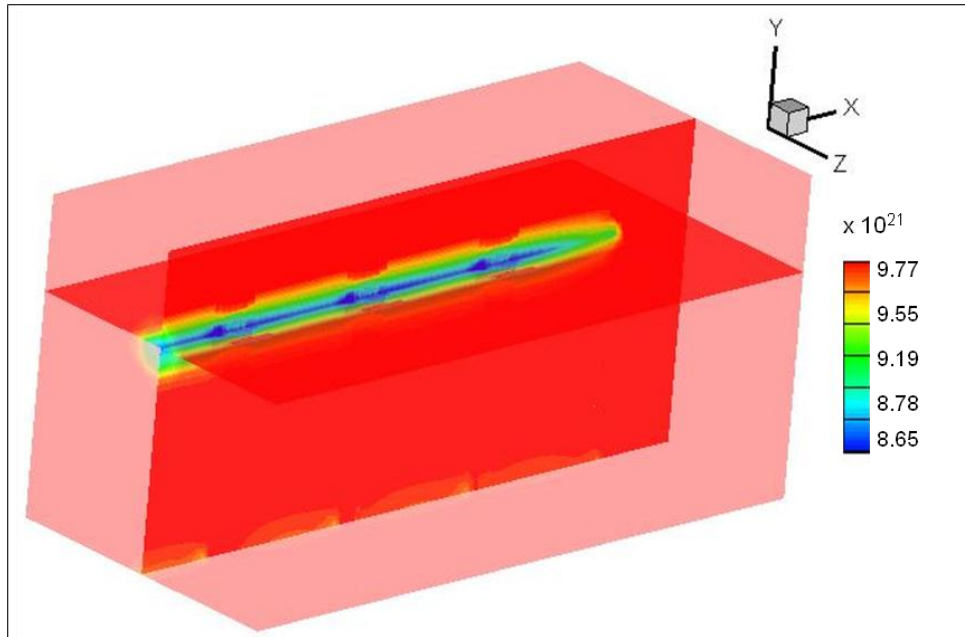


Figure V.12 : Cartographie 3D de la concentration de NO (m^{-3}) à $t = 1$ ms.

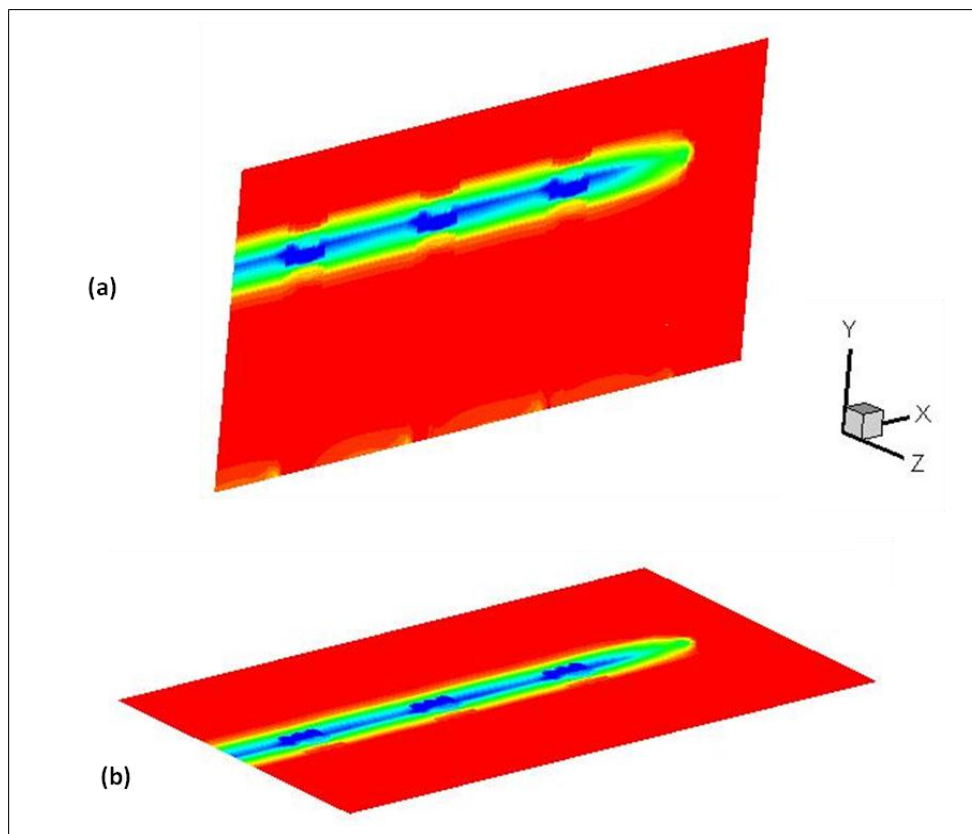


Figure V.13: Evolution de NO (m^{-3}) dans les plans de visualisation (a) $z = 5$ mm et (b) $y = 7$ mm à l'instant $t = 1$ ms.

La figure V.14 montre la comparaison à l'instant $t = 1$ ms entre les profils de la densité de NO obtenus par simulations 2D et 3D. On remarque que la zone de faible concentration de NO est plus large en 3D (cf. figure V.12b) qu'en 2D (cf. figure V.12a) et que la destruction de NO est localement plus faible en 3D qu'en 2D ($8,65 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ en 3D contre $8,35 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ en 2D). Pour interpréter ces résultats, il faut se souvenir que la zone de destruction de NO se confond avec la zone de forte concentration d'ozone. Lors de son interaction avec l'ozone, le NO est consommé pour former du NO_2 . Le déficit résultant peut être comblé par l'apport de molécules de NO transportées par l'écoulement et qui diffusent vers les zones de faible concentration. En 3D, l'écoulement entoure entièrement la zone dépeuplée et la diffusion s'effectue sur une surface beaucoup plus grande qu'en 2D. Le repeuplement est donc plus efficace en 3D qu'en 2D. A ce phénomène se rajoute la diffusion 3D des molécules d'ozone qui occupent de ce fait un volume plus important et sont donc moins concentrées qu'en 2D.

La comparaison des résultats montre également les effets du maillage inhomogène avec des discontinuités qui apparaissent aux frontières des domaines de dimensions de mailles différentes.

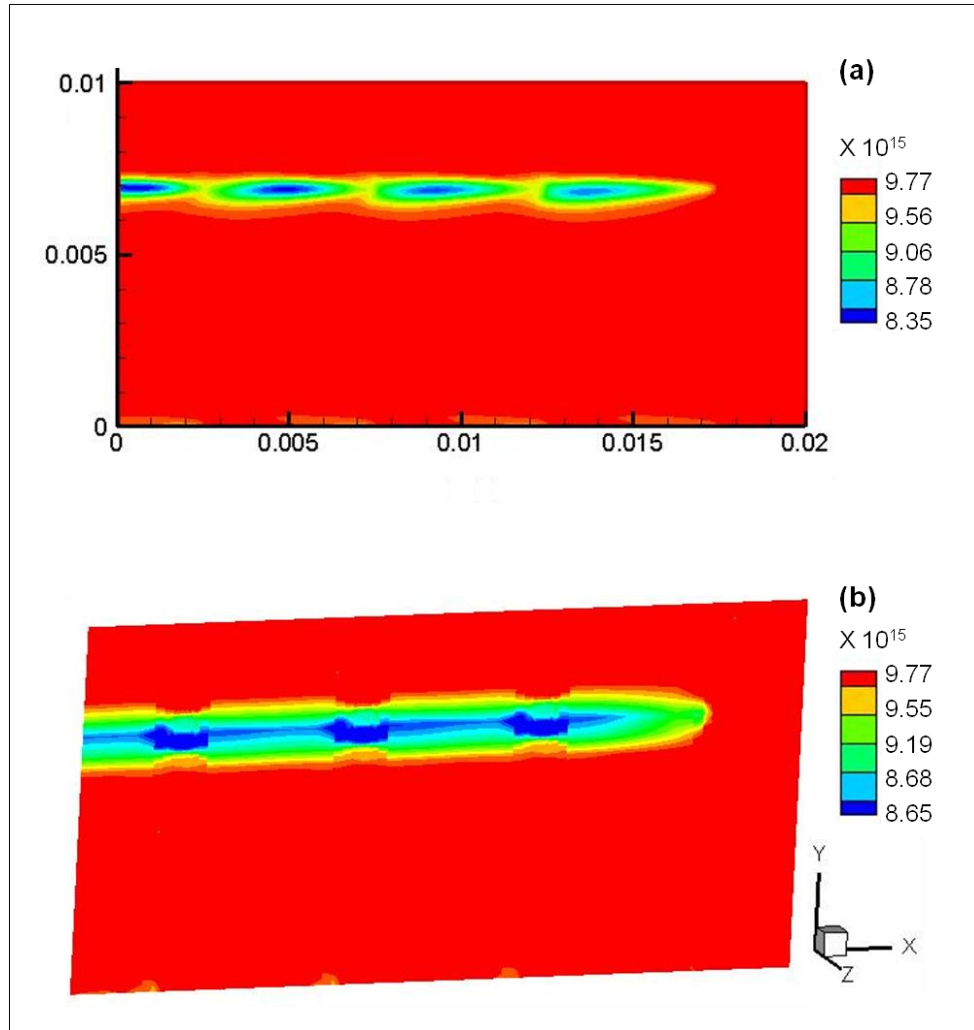


Figure V.14: Comparaison de l'évolution de la densité de NO à l'instant $t = 1$ ms, (a) simulation 2D et (b) simulation 3D.

VI. Conclusion :

Ce chapitre a été consacré à la modélisation 3D d'un réacteur de dépollution des gaz d'échappements utilisant les décharges électriques de type couronnes en configuration mono et multi pointes-plan. L'augmentation très importante du nombre de mailles liée à la transition 2D \rightarrow 3D nous interdit de conserver une taille de maille uniforme sur l'ensemble du domaine de calcul. Un maillage fin, avec des dimensions de mailles équivalentes au diamètre de décharge ($50 \mu\text{m}$) est pourtant nécessaire au voisinage proche de chaque décharge. Nous avons donc été contraints d'utiliser un maillage non homogène avec des mailles de plus grand

volume dans les zones éloignées des décharges. Différents tests, réalisés en géométrie bidimensionnelle, nous ont montré que l'on pouvait augmenter la taille des mailles d'un facteur 10 sans observer de variation significative dans la solution convergée tout en conservant des temps de calculs raisonnables. Le raffinement du maillage dans toute la géométrie 3D nécessitera une future parallélisation du code.

Les résultats du modèle 3D indiquent que, pour des géométries mono pointe et quadri pointes, la destruction du NO est comparable en intensité et en distribution spatiale à celle obtenue avec les hypothèses 2D. Cependant, la diminution de la concentration moyenne de NO est plus faible en 3D qu'en 2D puisque la zone de traitement est beaucoup plus petite en 3D en comparaison du volume de gaz étudié.

Ces premières simulations 3D montrent que la modélisation complète d'un réacteur de dépollution peut être envisagée moyennant des efforts importants de réduction des temps de calcul. Toutefois, ces résultats pionniers ouvrent des perspectives prometteuses dans la simulation complète des réacteurs de décharge couronne.

Conclusion générale

Ce travail a été consacré à une modélisation multidimensionnelle des écoulements gazeux réactifs traversés par des décharges électriques pour la décontamination des fluides (gaz et/ou eau). Les décharges électriques considérées dans ce travail sont de type couronnes dans des configurations mono et multi pointes plan, soumises à une tension continue de 7,2kV. Ce type de décharges prend des formes filamenteuses à la pression atmosphérique et est plus efficace pour la dépollution des gaz lorsque les polluants sont présents en faible concentration (comme par exemple dans les gaz d'échappements). Deux gaz ont été considérés dans cette étude, de l'air synthétique pour la production d'ozone puis de l'air pollué pour la modélisation de la décomposition du monoxyde d'azote. Ces simulations ont été effectuées dans différentes géométries 2D et 3D représentant des zones réduites du réacteur corona de dépollution des gaz. La réactivité du gaz prend en compte 10 espèces neutres réagissant entre elles selon 23 réactions préalablement sélectionnées.

Le but de cette thèse est le couplage des modèles de dynamique des gaz réactifs avec ceux des décharges couronne filamenteuses et constitue une première étape dans la modélisation complète des réacteurs de décontamination par décharges électriques. Un code commercial de CFD (FLUENT) a été utilisé et adapté via un module informatique de notre conception au cas de la dépollution et de la production d'ozone. Ce code résout les équations de la mécanique des fluides par la méthode des volumes finis. La modélisation est constituée de deux phases principales, la phase de décharge et la phase de post décharge. Dans la première phase une simulation de la propagation de streamer a été menée, celle-ci correspond au couplage des moments de l'équation de Boltzmann et de Poisson en utilisant un code complet de la phase décharge développé récemment dans le groupe et qui fonctionne en version parallélisée. Puis les termes sources issus de cette étape ont été intégrés en temps et en espace afin de pouvoir être injectés dans le code hydrodynamique FLUENT. La méthode d'injection a été validée puisque les profils axiaux des densités des espèces radicalaires et de la température issus du code de décharge et du code FLUENT sont très similaires. Des études paramétriques

préalables ont permis de justifier le choix d'un régime d'écoulement, la taille des mailles et l'hypothèse d'un décalage temporel de l'injection du terme source énergétique après la génération des ondes de pression.

Les injections périodiques des termes sources énergétiques engendrent une augmentation locale de la vitesse d'écoulement liée aux chocs thermiques et donc une redistribution des lignes de courant qui entraînent à terme des effets tourbillonnaires. Dans nos conditions de simulation, l'élévation de la température du gaz, due à la relaxation de l'énergie vibrationnelle sous forme d'énergie thermique après le passage de la décharge, est de l'ordre de 4K dans le canal de décharge. Cette faible montée n'a pas d'influence significative sur la cinétique chimique. L'influence du nombre de décharges et l'influence de la vitesse d'écoulement sur la production d'ozone ont été étudiés dans cette thèse et les résultats montrent que la production d'ozone augmente avec le nombre de pointes et avec le nombre des décharges qui traversent le milieu gazeux. Dans tous les cas, on observe des panaches de concentration et de température qui s'étendent en partant des pointes et qui suivent les lignes de courant de l'écoulement. En configuration multi-pointes, la concentration augmente localement lorsque les panaches se superposent. Dans cette thèse, un intérêt particulier a été donné à la dépollution d'un effluent gazeux dans l'air pollué initialement par une faible concentration de NO (400ppm) dans des configurations mono et multi pointes plan. La présence importante des radicaux N favorise la réduction de NO dans les canaux des décharges, et l'ozone formé par les radicaux O induit l'oxydation des NO dans le volume du réacteur. Ces transformations augmentent avec le nombre de pointes et le nombre de décharges qui traversent le milieu fluide. Lorsque le nombre des pointes dépasse 4, des zones de recirculation tourbillonnaires apparaissent aux pointes à partir de 1,2ms à cause de la dilatation thermique induite par le passage successif des décharges.

Pour finaliser ce travail de thèse une modélisation 3D a été réalisée dans des configurations de décharges mono et multi-pointes plan activant le milieu gazeux. La diffusion de l'énergie et de la densité des espèces est plus importante en comparaison avec le cas 2D.

Un état de l'art de la simulation des réacteurs couronnes a montré toute l'originalité de ce travail qui simule pour la première fois en géométries 2D et 3D l'écoulement d'un mélange gazeux activé par décharges couronnes de type streamer.

Les perspectives de ce travail sont multiples. Pour atteindre l'objectif de dépolluer les gaz d'échappement il faut augmenter le nombre de pointes et envisager des durées de simulation plus longues (de l'ordre de quelques secondes) ce qui va demander des temps de calculs très importants et une parallélisation du code sera alors vivement recommandée. Nous avons remarqué que la production d'ozone ainsi que la décomposition de NO est très importante à la pointe, il serait donc intéressant de ne pas placer les pointes sur le même niveau mais de les décaler les unes par rapport aux autres et de prendre en compte de nouvelles géométries pour modéliser ces décharges dans le réacteur complet. La diffusion de l'énergie et de la densité des espèces semblent sensibles aux choix du maillage et au degré de la géométrie (2D ou 3D). Il serait intéressant de poursuivre l'étude 3D en utilisant des maillages plus resserrés et ceci dans une version parallélisée pour augmenter significativement la durée physique de la simulation. De plus, on pourrait coupler, à la décharge étudiée, des gaz d'échappements plus complexes présentant un nombre d'espèces chimiques plus représentatif (en introduisant des COV par exemple). Enfin, et pour éviter des études instationnaires très coûteuses en temps de calcul, il serait intéressant d'étudier des couplages « équivalent stationnaire », c'est-à-dire de déterminer des termes sources équivalents qui injectés en régime permanent, reproduiraient le comportement de l'écoulement du réacteur de traitement.

Annexe A

Réactions prises en compte dans le modèle et paramètres des coefficients de réaction donnés par la loi d'Arrhenius: $R_\alpha(T) = \kappa T^\gamma \exp(-\theta/T)$ (Eichwald 1997), M = O₂, N₂

N°	Réactions	K _i (cm ³ s ⁻¹ , cm ⁶ s ⁻¹)	θ _i	γ _i
1	N + O ₂ → NO + O	0.440 10 ⁻¹¹	0.322 10 ⁴	0
2	N + NO → N ₂ + O	0.830 10 ⁻¹⁰	0	0
3	O + N + M → NO + M	0.180 10 ⁻³⁰	0	-0.5
4	O + NO + M → NO ₂ + M	0.175 10 ⁻²⁷	0	-1,37
5	O ₃ + NO → O ₂ + NO ₂	0.18 10 ⁻¹¹	1.137 10 ⁴	0
6	O + NO ₂ → NO + O ₂	0.521 10 ⁻¹¹	-0.202 10 ³	0
7	N + N + N ₂ → N ₂ + N ₂	0.830 10 ⁻³³	-0.500 10 ³	0
8	O + O ₂ + M → O ₃ + M	0.300 10 ⁻²⁷	0	-2.3
9	O ₃ + N → NO + O ₂	0.1 10 ⁻¹⁵	0	0
10	O+N ₂ → NO+N	0.106 10 ⁻⁵	0.384 10 ⁴	-1
11	N ₂ (A ³ Σ _u ⁺) + N ₂ → 2N ₂	0.300 10 ⁻¹⁷	0	0
12	N ₂ (A ³ Σ _u ⁺) + O ₂ → N ₂ + O ₂ (a ¹ Δg)	0.100 10 ⁻¹¹	0	0
13	N ₂ (A ³ Σ _u ⁺) + O ₂ → N ₂ + 2O	0.200 10 ⁻¹¹	0	0
14	N ₂ (A ³ Σ _u ⁺) + NO → NO+N ₂	0.150 10 ⁻⁹	0	0
15	N ₂ (A ³ Σ _u ⁺) + NO ₂ → NO + O + N	0.100 10 ⁻¹¹	0	0
16	N ₂ (A ³ Σ _u ⁺) + N → N ₂ + N	0.500 10 ⁻¹⁰	0	0
17	N ₂ (A ³ Σ _u ⁺) + O → NO+N	0.700 10 ⁻¹¹	0	0

18	$\text{N}_2 (\text{a}^1\sum_u^-) + \text{O}_2 \rightarrow \text{N}_2 + 2\text{O}$	$0.280 \cdot 10^{-10}$	0	0
19	$\text{N}_2 (\text{a}^1\sum_u^-) + \text{NO} \rightarrow \text{N}_2 + \text{N} + \text{O}$	$0.360 \cdot 10^{-9}$	0	0
20	$\text{O}_2 (\text{a}^1\Delta_g) + \text{N}_2 \rightarrow \text{O}_2 + \text{N}_2$	$0.500 \cdot 10^{-18}$	0	0
21	$\text{O}_2 (\text{a}^1\Delta_g) + \text{O}_2 \rightarrow 2\text{O}_2$	$0.500 \cdot 10^{-18}$	0	0
22	$\text{O}_2 (\text{a}^1\Delta_g) + \text{O}_3 \rightarrow 2\text{O}_2 + \text{O}$	$0.520 \cdot 10^{-10}$	$0.284 \cdot 10^4$	0
23	$\text{O}_2 (\text{a}^1\Delta_g) + \text{N} \rightarrow \text{NO} + \text{O}$	$0.200 \cdot 10^{-13}$	$0.600 \cdot 10^3$	0

Références

- ADEME, A. de l'Environnement et de la M. de l'Energie, Oxydation thermique et cathalytique. Available at: <http://www2.ademe.fr/servlet/listcatid=16022>.
- Abahazem, A., 2009. *Etudes expérimentales des décharges couronne pour la dépollution des gaz*. Toulouse: Thèse UPS.
- An, T. & Tai, P.G., 1860. *Phil. Trans. Roy. Soc.*, p.113.
- Ansys, Gambit 2 Tutorial Guide, <http://www.ansys.com/>.
- Ansys Fluent 12.0, *Manuel de Fluent Europe (Computational Fluid Dynamics Software)*,
- Atkinson, R. et al., 1989. Evaluated Kinetic and Photochemical Data for Atmospheric Chemistry: Supplement III. IUPAC Subcommittee on Gas Kinetic Data Evaluation for Atmospheric Chemistry. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 18(2), p.881.
- Babaeva, N.Y. & Naidis, G.V., 1996. Two-dimensional modelling of positive streamer dynamics in non-uniform electric fields in air. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 29(9), p.2423-2431.
- Ballereau, P., 1980. *Etude du vent électrique, contribution à l'étude et à la réalisation d'un détecteur depollution*. Paris-Sud: Université Paris-Sud (Orsay).
- Batina, J. et al., 2001. Hydrodynamical simulation of the electric wind in a cylindrical vessel with positive point-to-plane device. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 34(10), p.1510-1524.
- Bird, R.B., Stewart, W.E. & Lightfoot, E.N., 2006. *Transport Phenomena, Revised 2nd Edition* 2^e éd., John Wiley & Sons, Inc.
- Brancher, P., 2008. Cours de Master 2 Dynamique tourbillonnaire.
- Brethes-Dupouey, S., 1998. *Dépollution plasma chimique en phase gazeuse : Application à la destruction de l'hydrogène sulfuré. = Plasma chemical depollution in gaseous phase: Application to the H2S removal*. Text. Université de Pau. Available at: <http://cat.inist.fr/?aModele=afficheN&cpsidt=1818084>.
- Buss, K., 1932. *Arch. Elektrotech.*, p.261.

- Calmip, 2007. <http://www.calmip.cict.fr/spip/spip.php?rubrique90>.
- Candel, S., 2001. *Cours de Mécanique des Fluides* 2^e éd., Paris: DUNOD.
- Cardoso, R.P., 2007. *Plasmas micro-ondes en cavité résonnante à la pression atmosphérique: étude des plasmas d'hélium et applications au traitement des matériaux*. Lorraine: Institut National Polytechnique de Lorraine.
- Chatterjee, S., 2007. NO_x and PM emissions control on heavy-duty diesel engines using SCRT system. *Emission Reduction Technologies*.
- Creyghton, Y.L.M., 1994. *Pulsed Positive Corona Discharges. Fundamental Study and Application to Flue Gas treatment*. Eindhoven.
- Czernichowski, A. & al., 1992. Gliding discharge reactor for H₂S valorization or destruction", NATO ARW on non thermal plasma techniques of pollution control.
- Dhali, S.K. & Williams, P.F., 1987. Two-dimensional studies of streamers in gases. *Journal of Applied Physics*, 62(12), p.4696.
- Dorai, R. & Kushner, M.J., 2003. Consequences of unburned hydrocarbons on microstreamer dynamics and chemistry during plasma remediation of NO_x using dielectric barrier discharges. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 36(9), p.1075-1083.
- Dorai, R. & Kushner, M.J., 2001. Effect of multiple pulses on the plasma chemistry during the remediation of NO_x using dielectric barrier discharges. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 34(4), p.574-583.
- Dubois, D., 2006. *Réalisation et caractérisation d'un réacteur plasma de laboratoire pour des études sur la dépollution des gaz d'échappement*. Thèse UPS.
- Ducasse, O., 2006. *Modélisation Electrohydrodynamique d'un Réacteur Plasma Hors Equilibre de Dépollution des Gaz*. Thèse UPS.
- Eichwald, O. & al., 2011. *Hydrodynamics of micro-discharges in gases at atmospheric pressure*, Hydrodynamics / Book 3.
- Eichwald, O. et al., 2008. Experimental analysis and modelling of positive streamer in air: towards an estimation of O and N radical production. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 41(23), p.234002.
- Eichwald, O. et al., 2006. Effect of order fluid models on flue gas streamer dynamics. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 39(1), p.99-107.

- Eichwald, O. et al., 2002. Chemical kinetics with electrical and gas dynamics modelization for NO_x removal in an air corona discharge. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 35(5), p.439-450.
- Eichwald, O. et al., 1997. Coupling of chemical kinetics, gas dynamics, and charged particle kinetics models for the analysis of NO reduction from flue gases. *Journal of Applied Physics*, 82(10), p.4781.
- Eymard, R., Gallouet, T. & Herbin, R., 1997. *Finite volume methods*, Preprint n°97-19 du LATP, UMR 6632, Marseille, Handbook o.
- Füner, M., Wild, C. & Koidl, P., 1999. Simulation and development of optimized microwave plasma reactors for diamond deposition. *Surface and Coatings Technology*, 116-119, p.853-862.
- Gartling, D.K. & Hickox, C.E., 1985. A numerical study of the applicability of the Boussinesq approximation for a fluid-saturated porous medium. *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, 5(11), p.995-1013.
- Gentile, A.C. & Kushner, M.J., 1996. Microstreamer dynamics during plasma remediation of NO using atmospheric pressure dielectric barrier discharges. *Journal of Applied Physics*, 79(8), p.3877.
- Georghiou, G.E., Morrow, R. & Metaxas, A.C., 2001. The effect of photoemission on the streamer development and propagation in short uniform gaps. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 34(2), p.200-208.
- Georghiou, G.E., Morrow, R. & Metaxas, A.C., 1999. The theory of short-gap breakdown of needle point-plane gaps in air using finite-difference and finite-element methods. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 32(12), p.1370-1385.
- Goldman, M. & Goldman, A., 1993. Nature des espèces réactives formées par des décharges électriques dans les gaz à haute pression. *High Temp. Chem. Processes*, 2, p.215-220.
- Goldman, M., Goldman, A. & Sigmond, R.S., 1985. The corona discharge, its properties and specific uses. *Pure and Applied Chemistry*, 57(9), p.1353-1362.
- Graggs, J.D. & Meek, J.M., 1954. High voltage laboratory technique. *High voltage laboratory technique*.
- Grangé, F., 1997. *Modélisation et simulation numérique de l'initiation et de la propagation d'un front d'ionisation dans une décharge continue en champ inhomogène*. UPPA.
- Green, K.M. et al., 2001. Electronic excitation temperature profiles in an air microwave plasma torch. *Plasma Science, IEEE Transactions on*, 29(2), p.399-406.

- Guntoro, N.A., 2001. *Modélisation de la dynamique des neutres et la cinétique chimique dans les réacteurs plasmas de dépollution des gaz d'échappement*. Toulouse: ups.
- Hallac, A., Georghiou, G.E. & Metaxas, A.C., 2003. Secondary emission effects on streamer branching in transient non-uniform short-gap discharges. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 36(20), p.2498-2509.
- Hassouni, K., Massines, F. & Pouvesle, J.M., 2004. Plasmas hors-équilibre à des pressions atmosphériques, Plasmas froids: Génération, caractérisation, et technologies. *Publications de l'Université de Saint-Étienne*.
- Hines, A.L. & Maddox, R.N., 1984. *Mass Transfer: Fundamentals and Applications* 1^{er} éd., Prentice Hall.
- Hirschfelder, J.O., Curtiss, C.F. & Bird, R., 1954. *Molecular theory of gases and liquids*, John Wiley, New York, Chapman et Hall, London.
- Iza, F. & Hopwood, J., 2005. Split-ring resonator microplasma: microwave model, plasma impedance and power efficiency. *Plasma Sources Science and Technology*, 14(2), p.397-406.
- Jacobowicz, I., 1998. Dénitrification des gaz de combustion. *Techniques de l'ingénieur. Génie des procédés*, 4(J3922), p.1-16.
- Jing-Ming Guo & Chwan-Hwa John Wu, 1993. Two-dimensional nonequilibrium fluid models for streamers. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 21(6), p.684-695.
- Kacem, S et al., 2010. Shock wave and gas dynamics simulation in positive point-to-plane air corona discharge. *Gas Discharge*, p.276-279.
- Kacem, Samira, 2011. *Modélisation électro-hydrodynamique des décharges couronne dans l'air à la pression atmosphérique pour application aux actionneurs plasmas*. Toulouse: UPS.
- Kanazawa, S. et al., 2008. Generation of microplasma jet at atmospheric pressure using a modified waveguide-based plasma torch. *Surface and Coatings Technology*, 202(22-23), p.5275-5279.
- Kawamura, Keita et al., 1980. Pilot plant experiment on the treatment of exhaust gas from a sintering machine by electron beam irradiation. *Environmental Science & Technology*, 14(3), p.288-293.
- Khacef, A. & Cormier, J.M., 2006. Pulsed sub-microsecond dielectric barrier discharge treatment of simulated glass manufacturing industry flue gas: removal of SO₂ and NO_x. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 39(6), p.1078-1083.

- Kim, H., 2004. Nonthermal Plasma Processing for Air-Pollution Control: A Historical Review, Current Issues, and Future Prospects. *Plasma Processes and Polymers*, 1(2), p.91-110.
- Kim, J. & Terashima, K., 2005. 2.45 GHz microwave-excited atmospheric pressure air microplasmas based on microstrip technology. *Applied Physics Letters*, 86(19), p.191504.
- Kossyi, I.A. et al., 1992. Kinetic scheme of the non-equilibrium discharge in nitrogen-oxygen mixtures. *Plasma Sources Science and Technology*, 1(3), p.207-220.
- Kulikovskiy, A.A., 2000. The role of photoionization in positive streamer dynamics. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 33(12), p.1514-1524.
- Kunhardt, E.E. & Tzeng, Y., 1988. Development of an electron avalanche and its transition into streamers. *Physical Review A*, 38(3), p.1410.
- Kuo, K.K.-yun, 1986. *Principles of Combustion* 2^e éd., New york: Wiley-Interscience.
- Köhler, W. & Wiegand, S., 2002. Thermal Nonequilibrium Phenomena in Fluid Mixtures. Available at: <http://adsabs.harvard.edu/abs/2002>.
- Labergue, A. et al., 2004. Experimental study of the detachment and the reattachment of an airflow along an inclined wall controlled by a surface corona discharge-application to a plane turbulent mixing layer. *IEEE Transactions on Industry Applications*, 40(5), p.1205- 1214.
- Launder, B. & Spalding, D.B., 1972. *Lectures in Mathematical Models of Turbulence*, Academic Press Inc.
- Lin, T.H., Belser, M. & Tzeng, Y., 1988. Pulsed microwave plasma etching of polymers in oxygen and nitrogen for microelectronic applications. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 16(6), p.631-637.
- Loeb, L.B., 1965. Electrical Coronas, their basic physical mechanisms. *Electrical Coronas, their basic physical mechanisms*.
- Loiseau, J.F., Batina, J., et al., 2002. Hydrodynamical simulation of the electric wind generated by successive streamers in a point-to-plane reactor. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 35(10), p.1020-1031.
- Lozansky, E.D., 1969. The mechanism of secondary processes in the streamer breakdown of gases. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2(1), p.137-139.

- Léger, L. et al., 2001. Influence of a DC corona discharge on the airflow along an inclined flat plate. *Journal of Electrostatics*, 51-52, p.300-306.
- Marode, E. et al., 1999. Time resolved temperature measurements and computation of streamer air discharge and diffusion controlled chemistry. *J. Adv. Oxid. Technol*, 4(3).
- Marode, E., Bastien, F. & Bakker, M., 1979. A model of the streamer-induced spark formation based on neutral dynamics. *Journal of Applied Physics*, 50(1), p.140.
- Massman, W.J., 1998. A review of the molecular diffusivities of H₂O, CO₂, CH₄, CO, O₃, SO₂, NH₃, N₂O, NO, and NO₂ in air, O₂ and N₂ near STP. *Atmospheric Environment*, 32(6), p.1111-1127.
- Merk, H.J., 1959. The macroscopic equations for simultaneous heat and mass transfer in isotropic, continuous and closed systems. *Applied Scientific Research*, 8(1), p.73-99.
- Meziane, M. et al., 2011. 2D Simulation of active species and ozone production in a multi-tip dc air corona discharge. *18th CIP*, p.73.
- Mizuno, A. et al., 1999. Indoor air cleaning using a pulsed discharge plasma. *IEEE Transactions on Industry Applications*, 35(6), p.1284-1288.
- Monin, A.S. & Iaglom, A.M., 1975. *Statistical fluid mechanics: Mechanics of turbulence. Volume 2 /revised and enlarged edition/* Cambridge, Mass., MIT Press,, Available at: <http://adsabs.harvard.edu/abs/1975>.
- Moreau, Eric, 2007. Airflow control by non-thermal plasma actuators. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 40(3), p.605-636.
- Motret, O. et al., 2000. Rotational temperature measurements in atmospheric pulsed dielectric barrier discharge - gas temperature and molecular fraction effects. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 33(12), p.1493-1498.
- Mutaf-Yardimci, O. et al., 2000. Thermal and nonthermal regimes of gliding arc discharge in air flow. *Journal of Applied Physics*, 87(4), p.1632.
- Noel, C., 2009. *Plasmas micro-ondes d'argon à la pression atmosphérique : diagnostics et application au nettoyage des surfaces*. Lorraine: Institut national polytechnique de Lorraine.
- Odic, E. et al., 2003. Approach of the Physical and Chemical Specific Properties of Pulsed Surface Dielectric Barrier Discharges in Air at Atmospheric Pressure. *Journal of Advanced Oxidation Technologies*, 6(1), p.41-47.

- Ono, R. & Oda, T., 2003. Formation and structure of primary and secondary streamers in positive pulsed corona discharge effect of oxygen concentration and applied voltage. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 36(16), p.1952-1958.
- Ono, R. & Oda, T., 2004. Visualization of Streamer Channels and Shock Waves Generated by Positive Pulsed Corona Discharge Using Laser Schlieren Method. *Japanese Journal of Applied Physics*, 43(1), p.321-327.
- Orlandini, I. & Riedel, U., 2000. Chemical kinetics of NO removal by pulsed corona discharges. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 33(19), p.2467-2474.
- Pancheshnyi, S., 2005. Role of electronegative gas admixtures in streamer start, propagation and branching phenomena. *Plasma Sources Science and Technology*, 14(4), p.645-653.
- Pancheshnyi, S.V., Starikovskaia, S.M. & Starikovskii, A.Y., 2001. Role of photoionization processes in propagation of cathode-directed streamer. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 34(1), p.105-115.
- Pancheshnyi, S., Nudnova, M. & Starikovskii, A., 2005. Development of a cathode-directed streamer discharge in air at different pressures: experiment and comparison with direct numerical simulation. *Physical Review. E, Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*, 71(1 Pt 2), p.016407.
- Panousis, E. et al., 2006. Coupled electrodynamic and kinetic modelling of a low pressure nitrogen discharge. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 39(10), p.2140-2150.
- Papadakis, A.P. et al., 2005. Numerical modelling of atmospheric pressure gas discharges leading to plasma production. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 38(20), p.R303-R328.
- Patankar, S., 1980. *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow* 1^{er} éd., Taylor & Francis.
- Penetrante, B.M. et al., 1997. Comparison of pulsed corona and electron beam processing of hazardous air pollutants. *J. Adv. Oxid. Technol*, 2(2), p.299-305.
- Penetrante, B.M. et al., 1995. Comparison of electrical discharge techniques for nonthermal plasmaprocessing of NO in N₂. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 23(4), p.679-687.
- Peyrous, R., 1986. . *Simulation de l'évolution temporelle de diverses espèces gazeuses créées par l'impact d'une impulsion électronique dans de l'oxygène ou de l'air sec ou humide*. Pau: UPPA.

- Plooster, M.N., 1971. Numerical Simulation of Spark Discharges in Air. *Physics of Fluids*, 14(10), p.2111.
- Pérez, J.-P., 2001. *Mécanique: Fondements et applications - Exercices et problèmes résolus*, Dunod.
- Rathear, H., 1964. Electron avalanches and beakdown in gases. *Butterworths scientific publications*.
- Reid, R.C., Prausnitz, J.M. & Poling, N.B., 1987. *The properties of gases and liquids 4th Edn* McGraw-Hill New York.,
- Ricard, A. et al., 2010. Time Varying Afterglow Emission and Gas Pressure in a Pulsed N2 Gas Microwave Flowing Discharge at Reduced Pressure. *The European Physical Journal - Applied Physics*, 49(01), p.null.
- Ricard, Andre, 2005. Optical spectroscopy on processing plasmas: cathode magnetron sputtering and flowing post-discharges for elastomer activation and medical sterilization. *Thin Solid Films*, 475(1-2), p.1-5.
- Robinson, M., 1961. Movement of air in the electric wind of the corona discharge. *AIEE Transactions*, 80, p.143-150.
- Ruste, J., *Technique du vide* Chapitre V - EDF R&D Département matériaux et Mécanique des Composants Les Renardières 77250 Moret sur Loing., <http://micro.icaunais.free.fr/vide.pdf>.
- Schonland, B.F.J., 1953. *Atmospheric Electricity* [2d ed., rev. and reset]., Methuen & Co.
- Siemens, W., 1857. Ueber die elektrostatische Induction und die Verzögerung des Stroms in Flaschendrähnen. *Annalen der Physik*, 178(9), p.66-122.
- Sigmond, R.S., 1984. The residual streamer channel: Return strokes and secondary streamers. *Journal of Applied Physics*, 56(5), p.1355-1370.
- Spyrou, N., Held, B., et al., 1992. Gas temperature in a secondary streamer discharge: an approach to the electric wind. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 25(2), p.211-216.
- Svehla, R.A., 1962. *Estimated Viscosities and Thermal Conductivities of Gases at High Temperatures* National Aeronautics and Space Administration, Technical Repor., NASA. <http://ntrs.larc.nasa.gov/search.jsp?R=19630012982&qs=Ns%3DPublication-Date%7C0%26N%3D4294952183>.

- Séguir, P., Bourdon, A., et al., 2006. The use of an improved Eddington approximation to facilitate the calculation of photoionization in streamer discharges. *Plasma Sources Science and Technology*, 15(4), p.648-660.
- Tendero, C., 2005. *Torche plasma micro-onde à la pression atmosphérique: application au traitement de surfaces métalliques*. thesis. Limoges: Université de Limoges. Available at: <http://epublications.unilim.fr/theses/index.php?id=5506>.
- Tochikubo, F. & Arai, H., 2002. Numerical Simulation of Streamer Propagation and Radical Reactions in Positive Corona Discharge in N_2/NO and $N_2/O_2/NO$. *Japanese Journal of Applied Physics*, 41(Part 1, No. 2A), p.844-852.
- Tsai, C.-H. et al., 2001. Decomposition of CH_3SH in a RF Plasma Reactor: Reaction Products and Mechanisms. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 40(11), p.2384-2395.
- Villeger, Sandrine, Sarrette, Jean Philippe & Ricard, André, 2005. Synergy Between N and O Atom Action and Substrate Surface Temperature in a Sterilization Process Using a Flowing N_2-O_2 Microwave Post Discharge. *Plasma Processes and Polymers*, 2(9), p.709-714.
- Vitello, P.A., Penetrante, D.M. & Bardsky, J.N., 1992. Multi-dimensional Modeling Of The Dynamic Morphology Of Streamer Coronas. Dans , 1992 *IEEE International Conference on Plasma Science, 1992. IEEE Conference Record - Abstracts.* , 1992 IEEE International Conference on Plasma Science, 1992. IEEE Conference Record - Abstracts. IEEE, p. 86-87.
- Wang, Y.-F. et al., 1999. Reaction Mechanisms in Both a $CHF_3/O_2/Ar$ and $CHF_3/H_2/Ar$ Radio Frequency Plasma Environment. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 38(9), p.3199-3210.
- Webmaster, 2008. CICT-CALMIP - Centre Interuniversitaire de Calcul de Toulouse. Available at: <http://calcul.math.cnrs.fr/spip.php?article19>.
- Wikipédia, <http://fr.wikipedia.org/wiki/Ozone>.
- Wu, C. & Kunhardt, E.E., 1988. Formation and propagation of streamers in N_2 and N_2-SF_6 mixtures. *Physical Review A*, 37(11), p.4396.
- Yakhot, V. & Smith, L.M., 1992. The renormalization group, the expansion and derivation of turbulence models. *Journal of Scientific Computing*, 7(1), p.35-61.
- Zhelezniak, M.B., Mnatsakanian, A.K. & Sizykh, S.V., 1982. Photoionization of nitrogen and oxygen mixtures by radiation from a gas discharge. Available at: <http://adsabs.harvard.edu/abs/1982TepVT.20.423Z>.

Modélisation 2D et 3D d'un écoulement gazeux instationnaire activé par décharges couronne dans un réacteur multi-pointes plan dédié à la décontamination des gaz

Résumé

Cette thèse est dédiée à la modélisation des réacteurs plasmas utilisant des décharges électriques de type couronne pour la décontamination des gaz. Ces réacteurs ont notamment la possibilité de traiter les agents polluants lorsqu'ils sont présents en très faible concentration (quelques centaines de ppm) dans un mélange gazeux. Cependant, chaque traitement demande des paramétrages spécifiques du réacteur qui est le plus souvent étudié en « boîte-noire » c'est-à-dire en bilan énergétique moyen et en taux de conversion entrée-sortie. En effet, les phénomènes in situ à l'origine de la transformation des polluants sont très localisés et fortement instationnaires. Ils sont donc quasiment inaccessibles à la mesure expérimentale. Ainsi, le but de cette thèse est la mise au point d'une simulation performante, capable d'expliquer les processus réactifs, énergétiques et hydrodynamiques qui prennent naissance dans les canaux filamentaires des décharges et qui s'étendent progressivement à l'ensemble du volume du réacteur. Ce type de modélisation permettra à l'avenir d'aider au design des réacteurs et de minimiser leurs coûts de développement.

La thèse est découpée en 5 chapitres principaux en plus de l'introduction et de la conclusion générale. Le premier chapitre décrit les principales caractéristiques des décharges couronne de type streamer à la pression atmosphérique ainsi que l'ensemble des phénomènes énergétiques, hydrodynamiques et cinétiques qui sont activés par leur passage. Le second chapitre présente les équations des modèles de la décharge et de l'écoulement réactif. Ce dernier est modélisé par les équations fluides d'un mélange réactif couplé avec l'équation de conservation de l'énergie des états vibrationnels. Un état de l'art de la modélisation des réacteurs corona est présenté suivi de la description du logiciel FLUENT choisi pour résoudre le système d'équations du modèle développé. Le chapitre 3 est dédié à la validation du modèle et des couplages décharge-gaz dans une configuration géométrique 2D. Les conditions de simulation sont celles d'une configuration expérimentale d'un réacteur mono-pointe plan développé dans le groupe et fonctionnant avec de l'air synthétique dans les conditions ambiantes de température et de pression. Les termes sources permettant de prendre en compte le passage périodique des décharges sont estimés à partir d'une simulation validée du développement des primary et secondary streamers. La simulation de l'écoulement prend en compte 10 espèces chimiques (dont les états métastables de la molécule d'azote et d'oxygène) réagissant selon 23 réactions. Les résultats ont permis de valider la procédure d'intégration des termes sources et de suivre en détail les variations de la température du gaz et des espèces chimiques en fonction du type d'écoulement (laminaire ou turbulent), de son orientation et du nombre de décharge traversant le gaz. Le chapitre 4 concerne la simulation 2D d'un réacteur multi-pointes-plan (jusqu'à 10 pointes) sur des durées allant jusqu'à 10ms avec une fréquence de répétition des décharges de 10kHz. Les simulations réalisées permettent de suivre et d'expliquer en détail la formation d'ozone puis la transformation d'un polluant test (de l'oxyde d'azote NO) en fonction du nombre de pointes en activité et des propriétés de l'écoulement. Enfin, le dernier chapitre montre les premiers résultats obtenus en 3D dans un cas mono-pointe et multi-pointe-plan.

Mots-Clés:

- | | |
|--|---------------------------------|
| - Simulation 2D et 3D d'un réacteur corona | - Production d'ozone |
| - Décharge couronne | - Hydrodynamique |
| - Ecoulement réactif | - Traitement des oxydes d'azote |

2D and 3D modeling of an unsteady gas flow stressed by corona discharges in a multi-point to plane reactor used for gas decontamination

Abstract

This thesis is dedicated to plasma reactors modeling and simulation using corona discharges for gases decontamination. These reactors are able to treat pollutants when they are present in very low concentrations (a few hundred ppm) in a gas mixture. However, each treatment requires specific studies of the reactor generally considered as a "black-box" which means that its efficiency is evaluated through global energy cost and input-output conversion rate. Indeed, the complex phenomena responsible of the pollutants transformation are spatially localized and strongly unsteady. They are therefore quasi inaccessible to experimental measurement. Thus, the goal of this thesis is to develop an efficient model able to follow and explain the reactive, energetic and hydrodynamic processes occurring in the filamentary discharges and which progressively extend to the entire reactor volume. This type of modeling will be useful in designing future reactors and also in minimizing the development costs.

The thesis is divided into five main chapters in addition to the general introduction and the conclusion. The first chapter describes the main features of corona discharges like streamers at atmospheric pressure and all the energetic, hydrodynamics and kinetics phenomena that are generated by their passage. The second chapter presents the discharge and the reactive flow model equations. The latter is modeled by reactive fluid mixture equations coupled with the energy conservation equation of vibrational excited states. A state of the art of the corona reactor modeling is presented followed by a description of the FLUENT software, which has been chosen in order to solve equations of our model. Chapter 3 is dedicated to validate the model and the discharge-gas coupling in a 2D geometry. The simulation conditions are those of an experimental configuration of a mono-tip to plane reactor developed in the group and working with synthetic air under ambient conditions of temperature and pressure. The source terms injected during each periodic passage of the discharges are estimated from a validated simulation of the primary and secondary streamers development. The flow simulation involves 10 chemical species (including nitrogen and oxygen metastable states) reacting following 23 reactions. The obtained results allowed to validate the source terms injection and to follow in detail the gas temperature and chemical species evolutions in function of the flow type (laminar or turbulent), its orientation and the number of discharge crossing the gas. Chapter 4 concerns the 2D simulation of a multi-tip to plane reactor (up to 10 tips) until 10ms with a discharge repetition frequency equal to 10 kHz. The simulations allow to explain and follow in detail the ozone formation and the transformation of a chosen pollutant (nitrogen oxide NO) in function of the number of tips and the flow properties. The final chapter shows the first results obtained for a 3D geometry in the case of mono and multi-tip to plane.

Keywords:

- 2D and 3D corona reactor simulation
- Corona discharge
- Reactive flow
- Ozone production
- Hydrodynamic
- Nitrogen oxides treatment